УДК 548.5:546.26-162:62-987

Л. М. Девін[1,*], П. М. Литвин[2], С. О. Івахненко[1], О. О. Заневський[1]

[1]Інститут надтвердих матеріалів ім. В. М. Бакуля НАН України, м. Київ, Україна

[2]Інститут фізики напівпровідників ім. В. Є. Лашкарьова НАН України, м. Київ, Україна

**ldevin350@gmail.com*

Вдосконалена методика дослідження руйнування HTHP-монокристалів алмазу через поширення тріщин під час ударних навантажень

Представлено результати дослідження руйнування HTHP-монокристалів алмазу типу IIa під час ударних навантажень з використанням мірних стрижнів Гопкінсона–Кольского. За рахунок керованого дозування амплітуди та тривалості імпульсів навантаження отримано відбиток всієї історії поширення тріщини від її зародження в зоні максимальних напружень зі швидким поширенням і формуванням гладкої поверхні, з подальшим стабільним розвитком та формуванням густого масиву дрібних ребер аж до сповільнення і стрибкоподібного поширення тріщини з формуванням східчастої структури у процесі завершення формування відколу. Показано топографічні особливості поверхні руйнування розмірами від 3 до 600 нм засобами атомно-силової мікроскопії. Змодельований тривимірний розподіл еквівалентних напружень фон Мізеса у разі стискування в цілому кристалі та відповідних фрагментах кристалу після крихкого руйнування.

***Ключові слова**: HTHP-монокристали алмазу типу IIa, поширення тріщини, фрактографічні особливості руйнування, динамічне навантаження, історія поширення тріщини.*

АКТУАЛЬНІСТЬ ПРОБЛЕМИ ТА СТАН ПИТАННЯ.

Руйнування монокристалів з ковалентним типом міжатомних зав'язків, до яких відноситься алмаз, дозволяють вивчити особливості зародження та поширення тріщин та визначити основні критерії та параметри, необхідні для побудови розрахункових моделей міцності й тріщиностійкості [1–4]. Вивчення особливостей формування поверхні зламу кристалів після руйнування дають багатий інформативний матеріал відносно утворення та розповсюдження тріщин. Ці дані неможливо отримати у разі статичного навантаження високомодульних кристалів алмазів малих розмірів у зв'язку зі складністю розділення процесів зародження тріщини та її подальшим розповсюдженням. Як показано в кількох опублікованих недавно наукових працях [1–4], у цьому випадку достатньо інформативними є дослідження особливостей поверхонь руйнування за допомогою фрактографічного аналізу з використанням електронної та атомно-силової мікроскопії. Отримані дані можна використовувати для оцінки теоретичної та реальної міцності кристалів алмазу та їхнього впливу на механічні напруження в залежності від дефектів струк-

© Л. М. ДЕВІН, П. М. ЛИТВИН, С. О. ІВАХНЕНКО, О. О. ЗАНЕВСЬКИЙ, 2024

тури – домішок, дислокацій, включень, характеру мікротріщин. Враховуючи анізотропію кристалів, необхідно використовувати методи випробувань з урахуванням орієнтування навантажень відносно кристалографічних осей алмазу та розташування габітусних площин.

Вивчення процесів руйнування монокристалів алмазу має велике практичне значення для розробки різних типів алмазних інструментів. Основним об'єктом в дослідженнях поведінки крихких матеріалів під час навантаження є вивчення утворення механічних напружень на різних етапах навантаження. Такий підхід звичайно використовують для досліджень крихких високомодульних матеріалів, якими є кристали алмазу. Інтенсивність напружень, коли тріщина зароджується під дією зовнішніх навантажень, сильно відрізняється від їхньої інтенсивності в стадії подальшого розповсюдження тріщини. В момент порушення цілісності кристала ці особливості відбиваються на новостворених поверхнях і часто є єдиними підказками, які видно під час фрактографічного дослідження, тобто вони доступні для дослідження історії механічного руйнування кристала. Тому вивчення зміни напружень під час утворення і подальшого розповсюдження тріщини, які можна вивчати по фрактографічних слідах на новостворених поверхнях, є потужним індикатором процесу руйнування крихких анізотропних кристалів у процесі швидкого поширення тріщин.

З іншого боку, не існує стандартів для оцінки механічного руйнування кристалів алмазу, де їхнє вивчення стає більш складним у зв'язку з їхньою анізотропією. Дотепер дуже мало досліджень, що дозволяють зрозуміти та оцінити рівень напружень та деформацій у цих матеріалах у разі навантаження та, особливо, у разі ударних навантажень. Це стосується і моменту зародження тріщини, і початку магістрального поширення тріщини.

Для вивчення таких швидкоплинних процесів системи навантаження та реєстрації навантажень повинні мати високу швидкодію та достатню роздільну здатність.

В роботі було зосереджено увагу на аналізі експериментальних даних, отриманих під час поширення тріщини в монокристалах алмазу типу II*a*, вирощених за високих тисків і температур (HTHP) і призначених для інструментального використання.

Метою роботи було вивчення та аналіз поверхонь зламу структурно досконалих зразків алмазів розміром 2–3 мм та масою 0,07–0,15 карат після їхнього ударного навантаження зусиллями 2–50 кН, вивчення морфології поверхонь зламів і топографічних особливостей розповсюдження тріщин експериментально зруйнованих зразків з оцінкою напружень у зоні контакту зразка з опорами.

Розширений фрактографічний аналіз поверхні зламу монокристалів алмазу є, по суті, подальшим розвитком методик, використаних в [1–4], де вивчали руйнування кремнію, алмазу та арсеніду галію.

ОПИС ЗРАЗКІВ ТА МЕТОДИКА ВИПРОБУВАНЬ

Досліджувані монокристали алмазу кубооктаедричного габітуса типу II*a* було вирощено методом температурного градієнта в умовах HPHT: p = 6,5 ГПа, T = 1380–1420 °C в системі Fe–Al–B–C. Деталі технології росту кристалів опубліковані у [5]. Динамічне руйнування кристалів здійснювали у процесі удару на копрі вертикального навантаження з падаючим вантажем і мірними стрижнями Гопкінсона–Кольського. Фрактографічний аналіз відколів після крихкого руйнування проводили із застосуванням методів цифрової оптичної мікроскопії динамічного фокусу [6] в режимах світлого та

темного поля за допомогою мікроскопа Carl Zeiss NU2e (Німеччина). Тривимірне картографування мікро/наноморфологічних особливостей тонкої структури поверхні відколів проведено методом сканувальної атомно-силової мікроскопії за допомогою зондового мікроскопа NanoScope IIIa Dimension 3000 (Bruker Corp.) у режимі періодичного контакту з використанням кремнієвих зондів із номінальним радіусом вістря 8 нм. Напівкількісні оцінки еквівалентних напружень фон Мізеса [7] (критерію межі пластичності) в досліджуваних кристалах виконано в пакеті мультифізичного аналізу COMSOL (trial license) з використанням модулів механіки твердих тіл та лінійно пружних матеріалів. Тривимірні моделі реальних кристалів для моделювання в COMSOL отримували з використанням методу мікрофотограмметрії на близьких відстанях [8]. Такі тривимірні моделі дають вичерпний кількісний опис габітуса кристалу (об'єм, асиметрію, площі та кристалографічні індекси граней). Додатково кристалографічні орієнтації кристалів контролювали Х-променевим методом Лауе.

Фото одного з підготовлених зразків монокристалів для випробування та відповідні результати фотограмметричного аналізу наведено на рис. 1. Кристал має відносно малий фактор асиметрії η [9], що забезпечує незначний вплив відхилення форми кристалу від ідеально симетричної на результати випробувань. Об'єм кристалу складає 8,7 мм^3 за ваги ~ 0,03 г (0,15 карат). Монокристали алмазу кубооктаедричного габітусу типу II*a* вибирали для руйнування так, щоб вони мали дві паралельні кубічні грані. У даному випадку, вибрані грані відповідають напряму осі росту кристала. Крім того, статичну (нижню) грань та грань, що приймає імпульсне навантаження (верхню), вибирали якомога близькими за площею.

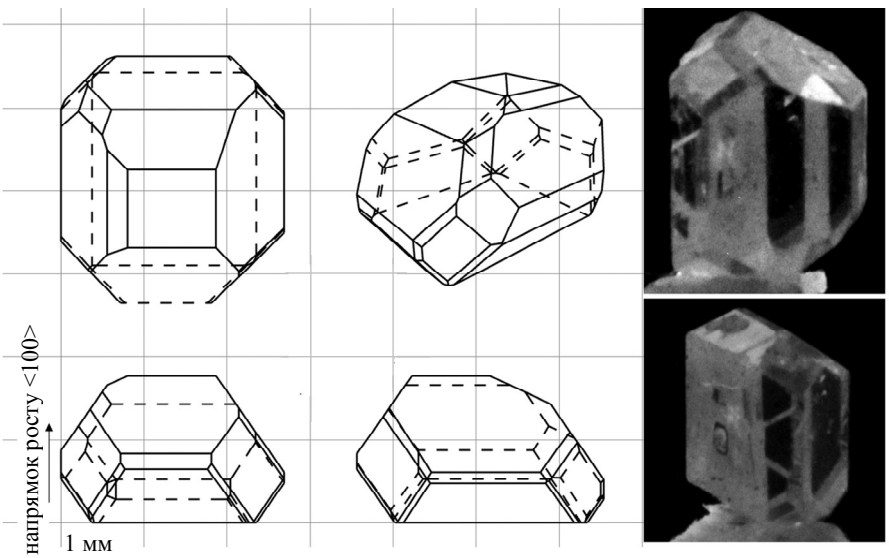


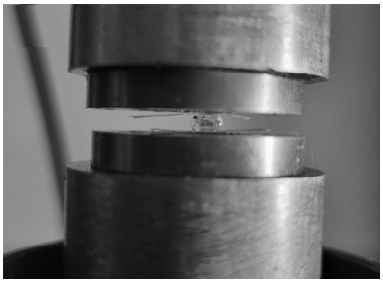
Рис. 1. Фотограмметричний аналіз кристала алмазу типу II*a* (грань куба [100]): об'єм V = 8,73 мм^3, сумарні площі граней S_{100} = 7,84 мм^2, S_{111} = 11,51 мм^2, S_{311} = 2,42 мм^2, S_{110} = 1,4 мм^2, фактор асиметрії η = 5,47.

Навантаження зразка здійснювали вздовж осі росту на копрі вертикального навантаження з падаючим вантажем і мірними стрижнями Гопкінсона–Кольського (рис. 2, *а*) [10].

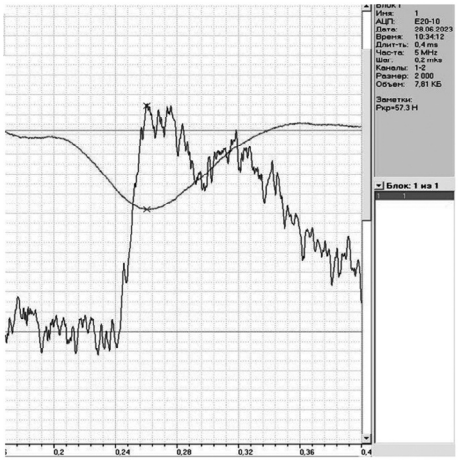
Бойок копра вільно падав з висоти 2–3 м на верхній мірний стрижень. За необхідності збільшити швидкість навантаження або енергію удару, бойок прискорювався електромагнітом гармати Гауса перед зіткненням бойка з верх-

нім стрижнем. Швидкість ударника було поміряно безпосередньо перед ударом і вона була в діапазоні від 1 до 7 м/с. Результуючий імпульс стискання, що падав на зразок алмазу, мав вигляд ударної хвилі з плоскою вершиною. Тривалість та енергію імпульсу задавали висотою підйому, радіусом торцевої поверхні бойка та енергією гармати Гауса. Розміщення кристала між опорами та характерну осцилограму руйнування кристала показано на рис. 2, *б*, *в* відповідно.

а



б



в

Рис. 2. Копер для динамічного навантаження на базі мірних стрижнів Гопкінсона–Кольського (*а*), розміщення зразка між стрижнями з твердосплавними опорами (*б*), приклад типової осцилограми руйнування кристала (*в*).

Параметри імпульсу стиснення реєстрували тензодатчиками з базою 3 мм, розташованими на кожному стрижні. Сигнали від датчиків через АЦП E20-10 з частотою дискретизації 5–10 МГц записували в пакеті програми PowerGraph.

За допомогою зміни геометрії бойка та його швидкості підбирали енергію та тривалість удару так, щоби кристал було зруйновано на 2–3 великі частини (рис. 3).

РЕЗУЛЬТАТИ ДОСЛІДЖЕНЬ

Приклад контрольованого руйнування кристала алмазу приведено на рис. 3. Після динамічного навантаження в кристалі утворилась магістральна тріщина, яка поширилась в об’ємі вздовж площини, близької до {110}. Водночас площина відколу пройшла через три виражених дефекти кристала, котрі утворені вбудованими фрагментами розчинника (два темні утворення по сторонах та одне внизу основі – області біля бічних граней {111} та область затравки, вказано стрілками).

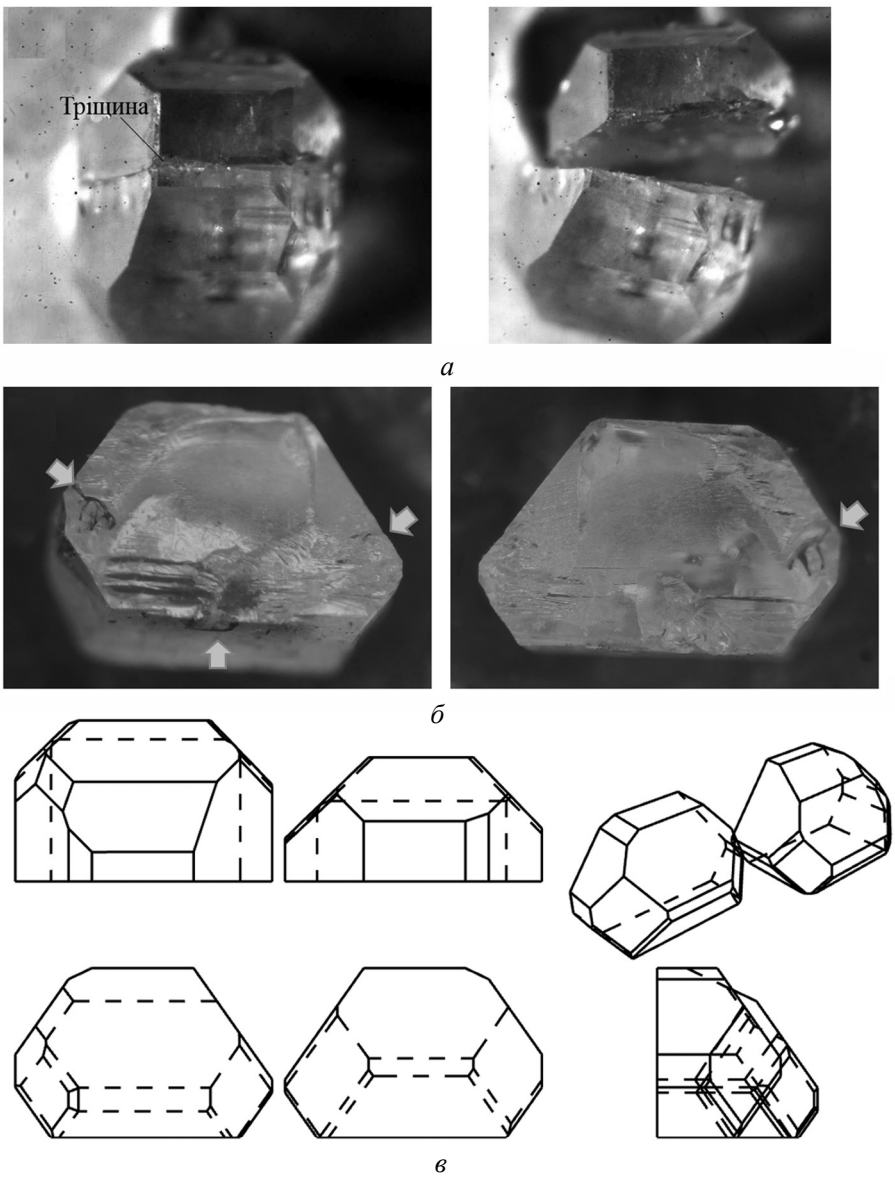


Рис. 3. Магістральна тріщина в кристалі алмазу (*а*), розділені частини кристала (*б*), фотограмметрична 3D модель частинок кристала (*в*); ростові дефекти кристала відмічено стрілками.

Відповідні осцилограми у разі послідовного збільшення навантаження кристала алмазу через збільшення швидкості бойка довжиною 10 см показано на рис. 4. Видно, що у разі скидання бойка з висоти до 30 см (див. рис. 4, крива *1*) зусилля до 2.5 кН не вистачило для утворення тріщини та руйнування кристала. У разі скиданні з висоти 45 см (див. рис. 4, крива *3*) і відповідному максимальному навантаженні 4,4 кН, утворилася магістральна тріщина, яка потім поширилася через увесь кристал. В результаті правильного вибору тривалості та амплітуди імпульсу не відбулося подальшого збільшення навантаження і дві частини зруйнованого кристала залишилися цілими.

Природно припустити, що у першому наближенні характер руйнування кристала можна змоделювати тривимірним розподілом еквівалентних напружень фон Мізеса у разі статичного навантаження. Точні 3D моделі реальних

кристалів імпортували в програму мультифізичних розрахунків COMSOL, де задавали навантаження на верхню грань 10 кН. Зразок описували усередненими значеннями констант алмазу, зокрема модуля пружності, без урахування кристалографічної анізотропії. Таке наближення допустиме з огляду на те, що у кристалів кубічної симетрії анізотропія пружних констант не є сильно вираженою у порівнянні з кристалами інших сингоній. Крім того, поверхні відколів досліджених кристалів не демонструють явних ознак анізотропії, пов'язаною з пірамідами росту різних напрямів.

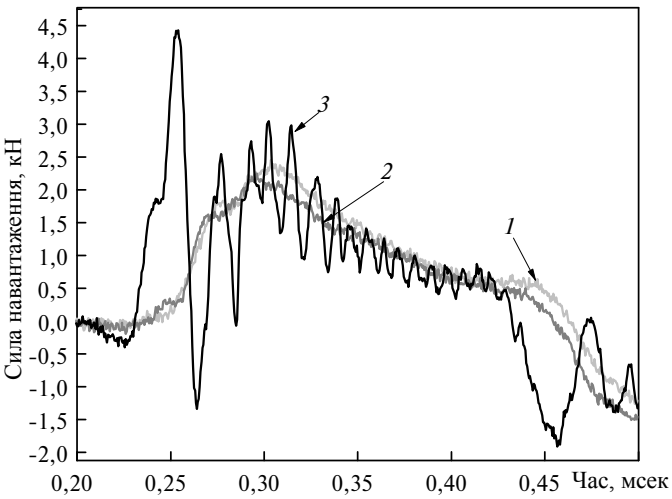


Рис. 4. Осцилограми навантаження монокристала алмазу у разі удару бойка з висоти 30 (*1*), 40 (*2*) і 45 (*3*) см.

Тривимірне моделювання розподілу еквівалентних напружень у всьому кристалі візуалізує грані та ребра реального кристала, які піддаватимуться найвищим навантаженням (максимальні напруження) з огляду на особливості форми (ступеня симетрії) кристала. Кристали, форма яких сприяла суттєвій локалізації напруження в певній області у разі одновісного стиснення до розгляду не приймали, або вибирали напрями навантаження між паралельними гранями, які забезпечували більш однорідний розподіл деформацій.

Для аналізу особливостей поверхонь відколів високоінформативними виявились 3D моделі розподілу напружень на частинах кристалів, утворених імпульсним руйнуванням. На рис. 5, *а* показано модельний розподіл еквівалентних напружень в частині кристала, утвореній крихким руйнуванням. Видно, що максимальні напруження зосереджені на невеликій глибині під гранню навантаження і спадають до основи. Водночас до бічних граней {100} та {111} напруження зменшуються досить різко. Такий модельний розподіл напружень добре корелює з морфологічними особливостями реального відколу (див. рис. 2, *б, в*). На макро- та мікрозображеннях поверхні відколу добре видно гладку (дзеркальну) поверхню під гранню навантаження, зону з дрібними мікротріщинами і характерний хвилястий рельєф в області малих напружень.

Ці зони відповідають класичним уявленням про зародження та поширення тріщин в крихких матеріалах [11–15]. Гладкі, дзеркальні ділянки (див. рис. 5, *в*, *1*) є характерними для околу зародження тріщини та її швидкого поширення, що у нашому випадку корелює з локалізацією зони розрахункових максимальних напружень. В околі перехідних напружень (див. рис. 5, *в*, *2*) поширення тріщини є стабільним із утворенням системи дрібних періодичних мікротріщин.

У міру того, як тріщина поширюється далі від джерела, з'являються більш грубі лінії (див. рис. 5, *в*, *3*). Ці тріщини в кристалах алмазу мають особливості спрямування поширення тріщини, на які можуть впливати внутрішня структура кристала та прикладені напруження. В периферійних областях (в зоні низьких напружень) поширення тріщини сповільнюється. На поверхні зламу можуть з'являтися сходинки або тераси, що є ознакою того, що тріщина поширювалася не рівномірно, а ступінчасто.

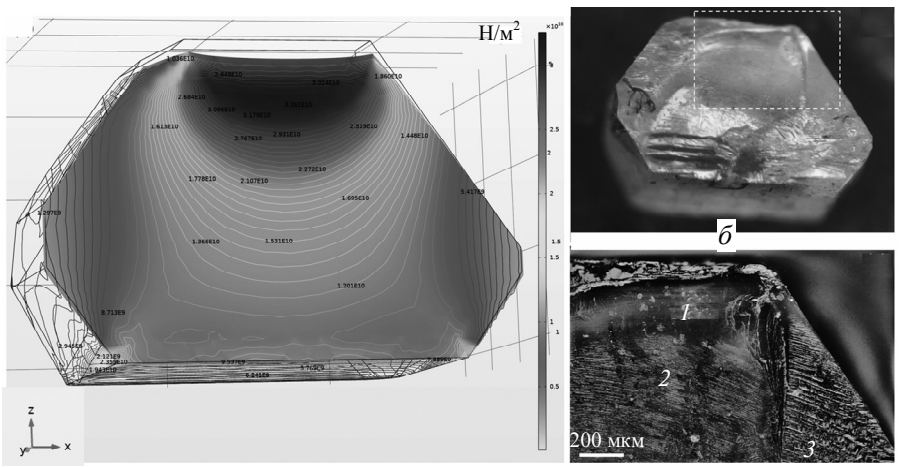


Рис. 5. Розрахунковий 3D розподіл еквівалентних напружень на відколі після крихкого руйнування кристала алмазу (*а*), макрозображення відповідного реального фрагмента кристала (*б*), контрастоване мікрозображення частини (окреслено прямокутником на *б*) відколу в темному полі оптичного мікроскопа (*в*): *1* – гладка (дзеркальна) поверхня під гранню навантаження; *2* – дрібні мікротріщини; *3* – хвилястий рельєф в області малих напружень.

Усі описані вище особливості поширення тріщини присутні на фрактографічному зображенні відколу кристала, взятому тут як приклад ілюстрації методичного підходу досліджень руйнування кристалів за ударних навантажень (рис. 6). Характер та симетрія розташування зони зародження та поширення тріщини добре корелює з розрахунковим полем напружень в кристалі за навантаження вздовж вертикальної осі. В периферійних областях низьких напружень на східчастий вигляд поширення тріщини суттєво впливають дефекти кристала, особливо – дефектна область в околі зародка кристала, що знаходиться у центрі основи.

Більше деталей про особливості поширення тріщини можна отримати з використанням тривимірної топометрії рельєфу відколу засобами атомно-силової мікроскопії. Сканувальна зондова мікроскопія надає детальну інформацію про лінійні та кутові характеристики елементів рельєфу від субнанометрового до мікронного діапазонів розмірів. Відповідні фрагменти рельєфу поверхні у зонах *1–3* (див. рис. 6) показано на рис. 7.

В дзеркальній зоні *1* присутні наноребра, висотою 3–15 нм та періодом ~ 600 нм. В зоні *2* стабільного поширення тріщини висота ребер складала 200–600 нм, період – ~ 2500 нм, кут при вершині ребер складав 125°–135°, кути із площиною поверхні – 25° та 28°. В зоні *3* висота ребер складала 200–300 нм, період 5000–7000 нм, кут при вершині дорівнював ~ 170°, кут із площиною поверхні – ~ 5° град. Також поверхня цих ребер вкрита субребрами

висотою 2–15 нм та з періодом ~ 300 нм. Кут субребер до основних ребер складав 36°. Характер рельєфу субребер є різним по різні сторони ребер (густіші та рівномірні за висотою на одній стороні та рідші і більший розкид за вистою на іншій). Такі детальні геометричні дані про наноморфологію відколу можна зіставити з відповідними кристалографічними площинами алмазу та розрахунковими енергіями їхнього відколювання (таблиця).

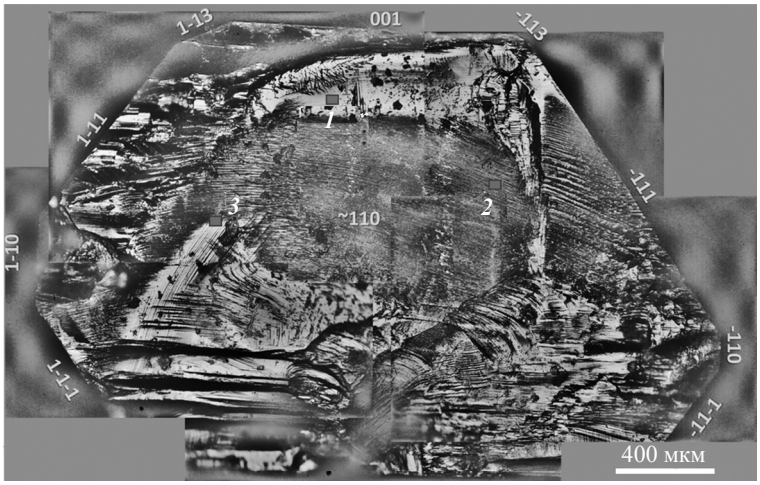


Рис. 6. Фрактограма відколу кристала алмазу, отримана засобами цифрової оптичної мікроскопії; прямокутниками *1–3* позначено зони, де проводили АСМ вимірювання рельєфу (див. рис. 5).

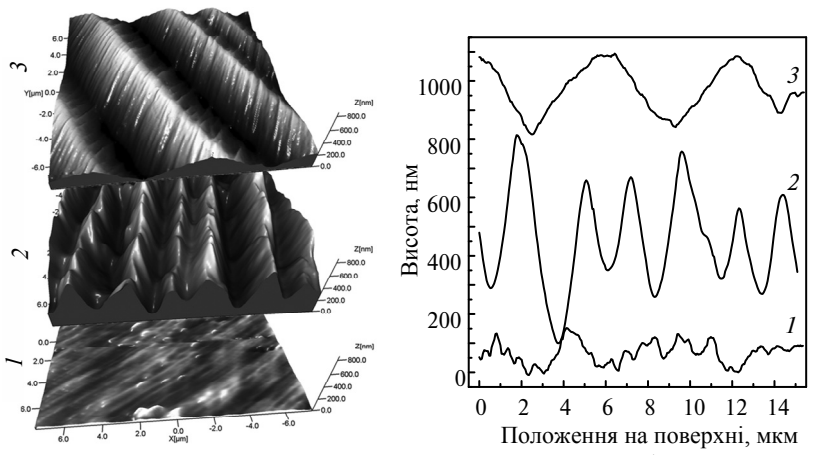


Рис. 7. 3D АСМ зображення фрагментів рельєфу поверхонь в зонах *1–3* (див. рис. 6) (*а*) та відповідні профілі висот впоперек ребер (*б*); амплітуду профілю *1* збільшено у 5 разів для кращої візуалізації.

ВИСНОВКИ

Вивчення розподілу напружень в монокристалі алмазу у взаємозв'язку з фрактографічними слідами є індикатором для розуміння механіки руйнування крихких анізотропних кристалів алмазів у процесі швидкого поширення тріщин.

Для вивчення таких швидкоплинних процесів, як руйнування монокристалів алмазу типу II*a* у разі динамічних навантажень система навантаження

та реєстрації навантажень повинні мати високу швидкодію (не менше 5 МГц) та достатню роздільну здатність.

Теоретично розраховані енергії відколювання кристалографічних площин алмазу [11]

Площина {*hkl*}	Кут між площиною {*hkl*} та площиною {111}	Енергія відколювання, Дж/м^2
111	0°, 70° 32'	10,6
332	10° 0'	11,7
221	15° 48'	12,2
331	22° 0'	12,6
110	35° 16', 90°	13,0
322	11° 24'	13,4
321	22° 12'	14,3
211	19° 28'	15,0
320	36° 48'	15,3
210	39° 14'	16,4
311	29° 30'	16,6
100	54° 44'	18,4

Вивчення поверхні зламу великих монокристалів алмазів типу II*a*, властивості та поведінка яких у разі ударних навантажень часто є предметом суперечок, дозволяють описати топографічні особливості експериментально зруйнованих зразків у разі дозування амплітуди та тривалості імпульсів динамічних навантажень з використанням мірних стрижнів Гопкінсона–Кольского, оснащених сучасними аналого-цифровими перетворювачами.

Характер відколу кристала відповідав типовій картині крихкого руйнування по кристалографічної площини (011) з наявними дзеркальною зоною, де зароджувалась тріщина, зонами розповсюдження магістральної тріщини, та хвилястою зоною, що переходила у східчасту форму на периферії.

Початок руйнування відбувався в зоні максимальних напружень зі швидким поширенням тріщини та формуванням гладкої поверхні (дзеркальна зона). Далі відбувався стабільний розвиток тріщини з формуванням густого масиву дрібних ребер (зона імли). В дзеркальній зоні присутні наноребра, висотою 3–15 нм та періодом ~ 600 нм. В зоні стабільного поширення тріщини висота ребер складала 200–600 нм, період – ~ 2500 нм.

ФІНАНСУВАННЯ

Роботу виконано за підтримки Національного фонду досліджень України, проєкт № 2020.02/0160 “Розробка нових складів розчинників вуглецю для вирощування монокристалів алмазу в області термодинамічної стабільності з контрольованим вмістом домішок азоту і бору з метою створення концепційних конструкцій електронних приладів”.

L. M. Devin, P. M. Lytvyn, S. O. Ivakhnenko, O. O. Zanevskyi
Bakul Institute for Superhard Materials,
National Academy of Sciences of Ukraine, Kyiv, Ukraine
Methodology of HTHP diamond single crystal brittle fracture investigations by crack propagation analysis under shock load

The study investigates the behavior of type IIa HTHP single crystal diamonds under shock loads, utilizing Hopkinson–Kolsky bars. Controlled variation of load pulse magnitude and duration enabled us to trace the complete history of crack progression. This ranged from crack initiation in areas of peak stress, through rapid crack propagation and the formation of a smooth surface, to its stable growth accompanied by the formation of a densely packed array of fine ribs, and eventually to a deceleration and discontinuous crack movement, culminating in a step-like structure at the conclusion of step formation. Atomic force microscopy was employed to reveal the topographic characteristics of the fracture surface, spanning dimensions from 3 to 600 nm. The study also modeled the three-dimensional distribution of equivalent von Mises stresses throughout the entire crystal and the respective crystal fragments post-brittle fracture.

Keywords*: type IIa HTHP single crystal diamond, crack propagation, fracture, fractographic features, dynamic loads, history of crack propagation.*

1. Lang J.M., Gupta Y.M. Strength and elastic deformation of natural and synthetic diamond crystals shock compressed along [100]. *J. Appl. Phys.* 2010. Vol. 107, art. 113538.
2. Lang J.M., Winey J.M., Gupta Y.M., Strength and deformation of shocked diamond single crystals: Orientation dependence. *Phys. Rev. B*. 2018. Vol. 97, art. 104106.
3. Moulins A., Ma L., Dugnani R., Zednik R.J. Dynamic crack modeling and analytical stress field analysis in single-crystal silicon using quantitative fractography. *Theor. Appl. Fract. Mech.* 2020. Vol. 109, art. 102693.
4. McWilliams R.S., Eggert J.H., Hicks D.G., Bradley D.K., Celliers P.M., Spaulding D.K., Boehly T.R., Collins G.W., Jeanloz R. Strength effects in diamond under shock compression from 0.1 to 1 TPa. *Phys. Rev. B*. 2010. Vol. 81, art. 014111.
5. Tsysar M., Zakora A., Babak A., Ivakhnenko S., Zanevskii O., Ilnitska H., Zakora I. Dependence of static strength of large crystals of synthetic diamond type ib of octaedric habitus, after chemical-thermal time and time. *Bull. Natl. Tech. Univ.* "*KhPI*" *Ser. Dyn. Strength Mach*. 2022. No. 1. P. 9–14.
6. Fan Y., Li J., Lu L., Sun J., Hu Y., Zhang J., Li Z., Shen Q., Wang B., Zhang R., Chen Q., Zuo C. Smart computational light microscopes (SCLMs) of smart computational imaging laboratory (SCILab). *PhotoniX*. 2021. Vol. 2, art. 19.
7. Budynas R.G., Nisbett J.K. Shigley's Mechanical Engineering Design. 11th editi. NY: McGraw Hill, 2019.
8. Lytvyn P.M., Strelchuk V.V., Nikolenko A.S., Danylenko I.M., Ivakhnenko S.O., Kovalenko T.V., Gontar O.G., Malyuta S.V. Digital micro-photogrammetry in analysis and modeling habit and sectoral structure of real high-pressure high-temperature single-crystal diamonds. *Rev. Sci. Instrum*. 2022. Vol. 93, art. 033903.
9. Tran R., Xu Z., Radhakrishnan B., Winston D., Sun W., Persson K.A., Ong S.P. Surface energies of elemental crystals. *Sci. Data.* 2016. Vol. 3, art. 160080.
10. Novikov N.V., Devin L.N., Ivanov S.A. Dynamometer for dynamic testing. *Industrial Laboratory*. 1980. Vol. 46, no. 7. P. 665–667.
11. Miyoshi K. Solid lubrication fundamentals and applications. New York: Marcel Dekker Inc., 2001. 414 p.
12. Ma L., Moulins A., Dugnani R. Analytical description of fracture features in single crystal silicon. *Eur. J. Mech. A/Solids.* 2021. Vol. 87, art. 104203.
13. Mazerat S., Pailler R. Dataset on fractographic analysis of various SiC-based fibers. *Data in Brief.* 2021. Vol. 34, art. 106676.
14. Huang S., Lin J., Wang N., Guo B., Jiang F., Wen Q., Lu X. Fracture behavior of single-crystal sapphire in different crystal orientations. *Crystals.* 2021. Vol. 11, no. 8, art. 930.
15. J.A., Quinn G.D. Fractographic analysis of large single crystal sapphire Salem refractive secondary concentrators. *J. Eur. Ceram. Soc*. 2014. Vol. 34. P. 3271–3281.

Надійшла до редакції 21.09.23
Після доопрацювання 25.09.23
Прийнята до опублікування 26.09.23