

辐照温度对钨材料表面微结构的影响

安泰岩 范红玉 王 研 王 翔 李 月

(大连民族学院 物理与材料工程学院 大连 116600)

摘要 本文采用 100 eV 的 He^+ 对钨进行辐照实验, 考察了辐照温度变化 (室温–800 °C) 对钨材料的表面损伤作用。分别采用扫描电镜(Scanning Electron Microscope, SEM)、透射电镜(Transmission Electron Microscope, TEM)、导电原子力显微镜(Conductive Atomic Force Microscopy, CAFM)以及 X 射线衍射(X Ray Diffraction, XRD)技术对辐照后样品的微观形貌、内表面缺陷分布以及晶格结构进行了分析。结果表明, He^+ 辐照后钨样品表面出现了纳米绒毛结构层, 这种结构层组织间的间距及覆盖率都随辐照温度的增加而增加。纳米结构层会造成样品表面损伤, 产生表面离域化, 但不会引起钨晶相的改变。通过无损的 CAFM 检测技术证实了样品表面绒毛结构层的形成与样品内表面纳米尺寸 He 泡的形成有关。

关键词 钨, 辐照损伤, 氦泡

中图分类号 TL62⁺7

DOI: 10.11889/j.0253-3219.2014.hjs.37.090201

钨材料具有高质量数、高熔点、高热导率、低溅射率等优点, 被认为是最有前景的一种面向等离子体材料(Plasma Facing Materials, PFM)^[1-2]。在国际热核实验反应堆(International Thermonuclear Experimental Reactor, ITER)以后的堆型设计中, 全 W-PFMs 概念已经成为共识。但是在聚变服役条件下, 钨材料要受到 14 MeV 中子辐照、高热负荷、低能 (几十电子伏至几千电子伏)、高通量 (通量高达 10^{22} – $10^{24} \text{ m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$) 氢氦等离子体辐照而发生损伤, 导致钨材料的力学和热学性能下降, 服役时间缩短, 严重影响聚变装置的安全性和可靠性。因此, 研究在聚变辐照条件下, 钨材料的损伤过程具有重要的意义^[3-7]。

本文研究了温度对低能大流强 He^+ 辐照引起的钨材料表面损伤作用, 采用扫描电子显微镜(Scanning Electron Microscope, SEM)、透射电子显微镜(Transmission Electron Microscope, TEM)、导电原子力显微镜(Conductive Atomic Force Microscopy, CAFM)以及 X 射线衍射(X Ray Diffraction, XRD)等复合技术分析了温度对钨材料表面形貌、辐照缺陷等形成过程的影响。本工作对于认识辐照缺陷的大小、分布等特征与钨样品微观形貌组织间的关系, 探讨钨材料的辐照损伤机制, 推动聚变堆关键材料的发展上具有重要意义。

1 实验方法

He^+ 辐照实验在实验室自主设计和搭建的等离子体辐照实验平台上完成, 其原理示意图见图 1。

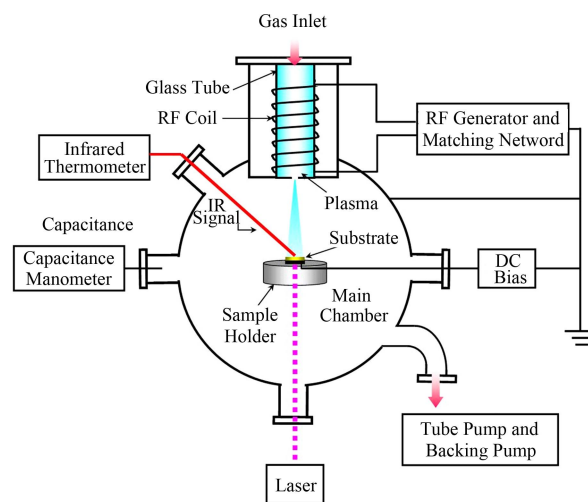


图 1 等离子体辐照实验平台原理图
Fig.1 Schematics of plasma irradiation experiment system.

该系统由离子源系统、离子引出系统、真空排气和检测系统、偏压引出系统、激光加热系统、温度监测系统等组成。与弧放电离子源辐照装置相比, 该设备采用高密度射频(Radio Frequency, RF)离子源, 可产生大流强(约 $10^{21} \text{ ions} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$) H^+ 、 He^+ 离子

辽宁省大学生创新创业训练计划项目(No.201412026000028)和大连民族学院“太阳鸟”学生科研项目(No.tyn2014357)资助

第一作者: 安泰岩, 男, 1993 年出生, 2012 年就读于大连民族学院攻读学士学位, 研究领域为材料辐照损伤

通讯作者: 范红玉, E-mail: fanhy@dlnu.edu.cn

收稿日期: 2014-05-30, 修回日期: 2014-07-07

流, 性能稳定(运行时间可达数十小时以上), 可实现长时间大剂量辐照实验。同时, 该系统采用激光加热技术, 基底温度可加热至上千度; 采用基底偏压技术, 可严格控制 H^+ 和 He^+ 离子能量, 使之在 5–1 000 eV 连续可调。通过改变放电功率、负偏压以及激光器功率等方式对等离子体束的流强、能量、基底温度等参数进行调控, 开展等离子体辐照方面的研究工作。本实验中的反应条件为: He^+ 能量为 100 eV, He^+ 辐照剂量为 $1 \times 10^{25} \text{ ions} \cdot \text{m}^{-2}$, He^+ 流强为 $6 \times 10^{20} \text{ m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$, 调整激光器功率, 使得基底温度分别控制在室温、400 °C、600 °C 和 800 °C。

采用 SEM 和 TEM 对不同辐照温度下样品的表面形貌进行了分析。采用 CAFM 对样品的表面形貌和内部缺陷的漏电流分布进行了表征。采用 XRD 对钨的晶格结构进行了初步分析。

2 结果与讨论

2.1 表面形貌分析

首先采用 SEM 对不同温度辐照下样品的表面形貌进行了分析。如图 2 所示, 钨材料经低能大流强 He^+ 辐照后, 表面形貌发生了明显改变。在室温辐照下, 样品表面出现了具有一定取向的绒毛状组织。随着辐照温度的增加, 绒毛组织间的间距逐渐增大, 绒毛组织呈现增长的趋势、绒毛区域的覆盖率逐渐增加。

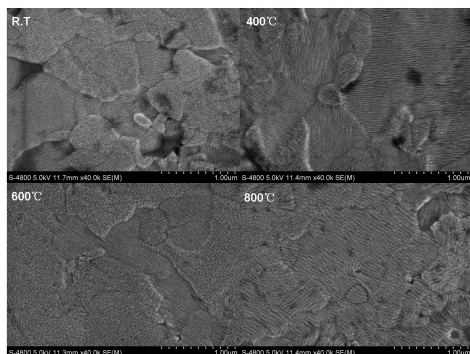


图 2 样品在不同辐照温度下的表面形貌图

Fig.2 Surface morphology of the samples irradiated at different temperatures.

通过样品的透射电镜照片也可以清晰地看到样品表面的绒毛结构层。如图 3 所示, 样品表面的绒毛长度约为 2 nm, 且已与表面发生明显的离域, 破坏了样品表面的晶体结构, 后面的 XRD 数据也进一步验证了这个结果。Baldwin 等^[8]采用 25–60 eV He^+ 辐照钨样品时也发现辐照后样品表面存在纳米结构的绒毛层, 这种结构层的孔隙率达到 90%。纳米结构层的形成会改变钨材料的一些物理化学特

性, 如绒毛结构层会加快材料表面的热量传递, 降低材料表面的熔点, 负载较大热负荷时更易熔化, 改变材料的力学性能等, 另外绒毛结构层的存在也会大大增加氦滞留量。而关于绒毛结构层形成的原因多归结于样品内部高压 He 泡的形成。

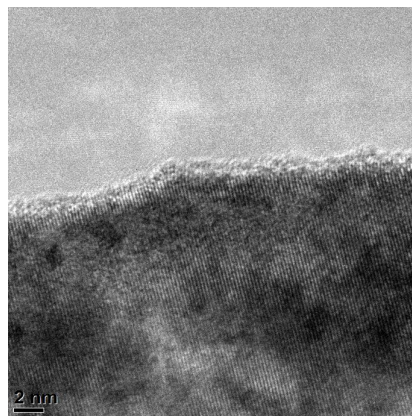


图 3 He^+ 辐照后钨样品的 TEM 照片(600 °C)

Fig.3 TEM photo of the W sample after He^+ irradiation (600 °C).

2.2 导电性分析

为了验证绒毛结构层的形成是否与样品内表面 He 泡的分布相关, 我们采用导电原子力显微镜对样品表面形貌和辐照缺陷分布之间的关系进行了分析。CAFM 是在 AFM 基础上发展起来的一种用于研究材料局部电学缺陷的技术。CAFM 与普通 AFM 最大的区别是所用的针尖为导电针尖。在样品和针尖之间施加一恒定偏压, 可以获得样品内电子发射图像, 即样品内局域缺陷的漏电流分布^[9–11]。CAFM 检测可同时得到样品的表面形貌图和内部缺陷的漏电流分布图。从表面形貌图像中, 可以直接比较材料表面的肿胀情况。钨材料经过离子辐照后, 会在晶格内部产生大量缺陷, 缺陷处的电子发射密度会发生改变, 因此通过电流分布图像就可以得到样品内部缺陷分布、大小及形态等特征。研究表明, CAFM 技术可以有效地比较样品表面微结构与内表面缺陷分布之间的关系, 对于损伤层附近的缺陷及 He 泡检测也比较敏感, 且相对于其他传统表征方法而言, 该方法简单、非破坏性^[12–13]。

图 4 为不同辐照温度下钨样品的表面形貌(左)和缺陷的漏电流分布(右)图像。从形貌图中可以看出, 随着辐照温度的增加, 样品表面形成有序性的绒毛状结构, 且绒毛组织覆盖率增加, 绒毛组织间的间距逐渐增大, 这与扫描电镜结果是一致的。从漏电流分布图中可以看出, 导电缺陷点的分布与绒毛结构组织的分布基本对应。导电缺陷点为圆形或者椭圆形, 尺寸在 10–50 nm 之间, 可归属为样

品内表面的 He 泡缺陷。而且随着辐照温度的增加, He 泡的密度和尺寸都在逐渐增加。这主要是因为钨材料在载能 He^+ 的轰击下会产生空位、杂质、位错等晶格缺陷。这些缺陷会成为捕获 He 的不饱和陷阱, 随着 He 的不断聚集和迁移, 小的缺陷逐渐聚集形成纳米尺寸的 He 泡缺陷, He 泡缺陷的存在造成钨材料表面电子发射发生改变, 从而形成具有一定形状和取向的电流分布图像。Shin 等^[14]指出当样品表面温度增加时, 这些内表面的高压 He 泡会逐渐迁移至样品表面, 最后冲破表面, 在表层形成粗糙的纳米结构绒毛层。CAFM 的实验结果则直接给出了样品表面绒毛组织结构与样品内表面 He 泡缺陷分布相关的证据, 进一步验证了 Shin 的结论。

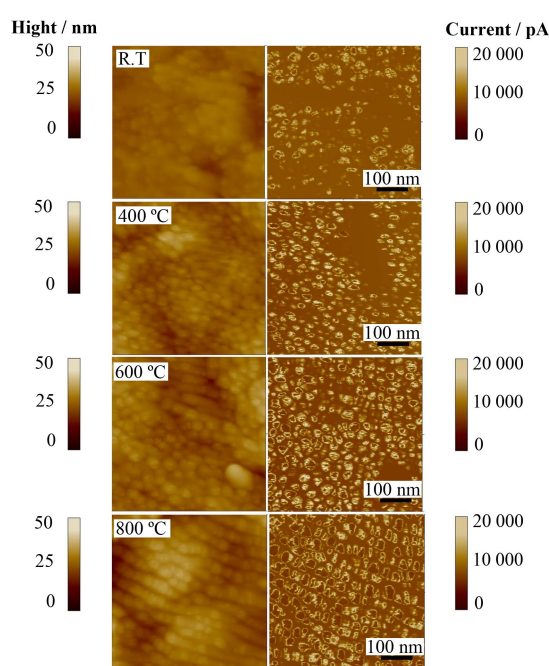


图4 采用 CAFM 测得样品在不同辐照温度下的表面形貌 (左) 和漏电流分布 (右)

Fig.4 Conductive atomic force microscopy analysis of the surface morphology (left) and current (right) of the samples irradiated at different temperatures.

2.3 晶体结构分析

为进一步说明 He^+ 辐照对钨材料的损伤行为, 采用 XRD 对样品的晶体结构进行了分析, 结果如图 5 所示。在图谱中出现了明显的多晶 α 型 W 的 (110)、(211)、(100) 衍射峰, 其中衍射主峰是 W(110) 衍射峰, 没有其他杂峰和 β 相 W 的出现。随着辐照温度增加, W(110) 衍射峰逐渐减弱, 衍射峰位置逐渐向大衍射角偏移, 晶格常数增加。这可能是因为辐照温度的增加更有利于 He 原子的聚集, 导致钨材料内部缺陷增加以及晶格的畸变, 造成样品表面

结构有序度的降低, 但是辐照并不会明显改变 W 的晶型结构。

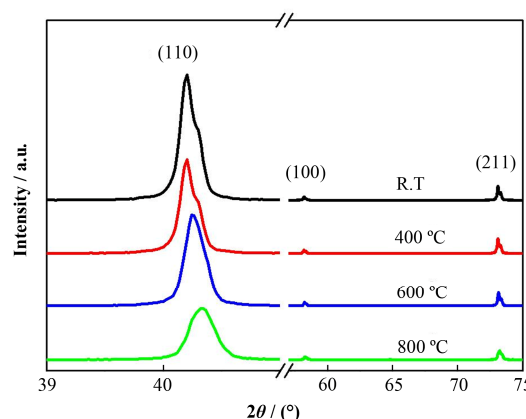


图5 不同辐照温度下钨的 XRD 谱图
Fig.5 XRD spectra of the W samples irradiated at different temperatures.

3 结语

He^+ 辐照钨后会明显改变钨样品的微观形貌, 从而降低了钨材料的物理化学性能。本文采用 SEM、TEM、XRD 以及 CAFM 表征方法分析了 He^+ 辐照温度对钨材料的表面的损伤作用。结果发现, 钨材料经低能大流强 He^+ 辐照后, 会在样品表面形成纳米绒毛结构层, 这种结构层组织间的间距和覆盖率随着辐照温度增加。XRD 和 TEM 的结果表明, 这种纳米结构层的形成会造成样品表面离域化, 使得样品结构的有序性降低, 但不会明显改变钨材料的晶型结构。通过无损的 CAFM 检测技术表明, 样品表面绒毛结构层的分布与样品内表面 He 泡缺陷的分布具有一定的对应关系。这进一步证实了样品表面绒毛结构层的形成与样品内表面纳米尺寸 He 泡的形成相关, 这对于深入理解钨材料微观组织结构的形成过程具有重要意义。

参考文献

- 1 Rudakov L, Wong C P C, Litnovsky A, *et al.* Overview of the recent DiMES and MiMES experiments in DIII-D[J]. Physica Scripta, 2009, **T138**: 014007
- 2 Li X C, Shu X L, Liu Y N, *et al.* Analytical W-He and H-He interatomic potentials for a W-H-He system[J]. Journal of Nuclear Materials, 2012, **426**: 31–37
- 3 Alimov V K, Tyburska-Püschel B, Hatano Y, *et al.* The effect of displacement damage on deuterium retention in ITER-grade tungsten exposed to low-energy, high-flux pure and helium-seeded deuterium plasmas[J]. Journal of Nuclear Materials, 2012, **420**: 370

- 4 Xue Y, Ahmed H. Molecular dynamics simulation of deuterium trapping and bubble formation in tungsten[J]. Journal of Nuclear Materials, 2013, **434**: 1–6
- 5 Tyburska B, Alimov V Kh, Ogorodnikova O V, *et al.* Trapping of permeating deuterium in defect induced at the rear side of tungsten samples[J]. Journal of Nuclear Materials, 2011, **415**: S680–S683
- 6 Ueda Y, Peng H Y, Lee H T, *et al.* Helium effects on tungsten surface morphology and deuterium retention[J]. Journal of Nuclear Materials, 2013, **442**: S267–S272
- 7 杨静怡, 闫隆, 怀平. Ar 离子辐照 C/C 复合材料的表面结构研究[J]. 核技术, 2014, **37**(5): 050202
YANG Jingyi, YAN Long, HUAI Ping. Surface structure investigation of C/C composites by Ar ion irradiation[J]. Nuclear Techniques, 2014, **37**(5): 050202
- 8 Baldwin M J, Doerner R P. Formation of helium induced nanostructure ‘fuzz’ on various tungsten grades[J]. Journal of Nuclear Materials, 2010, **404**: 165–173
- 9 Sun Z G, Kuramochi H, Akinaga H, *et al.* Conductive atomic force microscopy study of silica nanotrench structure[J]. Applied Physics Letters, 2007, **90**: 042106
- 10 Günther B, Roland B, Liu D P. A review of advanced scanning probe microscope analysis of functional films and semiconductor devices[J]. Thin Solid Films, 2009, **517**: 5100–5105
- 11 白志平, 范红玉, 袁凯, 等. 基于多模式扫描探针显微镜技术分析碳化硅的辐照损伤[J]. 核技术, 2014, **37**(1): 010204
BAI Zhiping, FAN Hongyu, YUAN Kai, *et al.* Irradiation damage in silicon carbide based on a multi-mode scanning probe microscope[J]. Nuclear Techniques, 2014, **37**(1): 010204
- 12 Fan H Y, Li R H, Yang D M, *et al.* Observation of He bubbles in ion irradiated fusion materials by conductive atomic force microscopy[J]. Journal of Nuclear Materials, 2013, **441**: 54–58
- 13 Fan H Y, Yang D M, Sun L, *et al.* Structural and electrical evolution of He ion irradiated hydrocarbon films observed by conductive atomic force microscopy[J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B, 2013, **312**: 90–96
- 14 Shin K, Naoaki Y, Reiko Y, *et al.* TEM observation of the growth process of helium nanobubbles on tungsten: nanostructure formation mechanism[J]. Journal of Nuclear Materials, 2011, **418**: 152–158

Influence of irradiation temperature on the surface damage of tungsten

AN Taiyan FAN Hongyu WANG Yan WANG Xiang LI Yue

(School of Physics and Materials Engineering, Dalian Nationalities University, Dalian 116600, China)

Abstract Background: In fusion reactors, W suffers from the displacement damage caused by high energy neutrons, and surface damage, such as blistering, erosion, and sputtering caused by low-energy (tens of eV to several keV) and high-flux (10^{20} – 10^{24} $\text{m}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$) helium and hydrogen ions. **Purpose:** The understanding of the behavior of W materials in fusion environment is a major issue of the material-related stake of fusion reactors. **Methods:** W samples were irradiated with low-energy (100 eV) and high-flux (6×10^{20} $\text{ions}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$) He^+ at a sample temperature changing from room temperature to 800 °C to a fluence of 1×10^{25} $\text{ions}\cdot\text{m}^{-2}$. Microscopic evolution of these samples was carried out using scanning electron microscopy (SEM), transmission electron microscopy (TEM), conductive atomic force microscopy (CAFM) and X-ray diffraction (XRD). **Results:** Analysis indicates that the nanometer-sized fibre-form structure is formed in the surface of W. The spacing and the covering degree of the nanostructure increase with the irradiation temperature. Nanostructure layer may cause the damage of W surface, resulting in surface delocalized, but does not cause a change in the crystal phase of tungsten. **Conclusion:** Non-destructive conductive atomic force microscopy gives the direct evidence that the forming of the nanometer-sized fibre-form structure is related to the nano-sized He bubbles. This is important for understanding the microstructure formation process of tungsten material.

Key words Tungsten, Irradiation damage, He bubble

CLC TL62⁺7