

doi: 103969/j.issn.0490-6756.2016.11.027

氦离子行为与钨中相关缺陷演化的研究

王 勇¹, 吴 双², 邓爱红¹, 王 康¹, 王 玲³, 卢晓波¹, 张元元¹

(1. 四川大学物理科学与技术学院, 成都 610064; 2. 西南民族大学电气信息工程学院, 成都 610041;

3. 四川大学原子核科学与技术研究所 辐射物理及技术教育部重点实验室, 成都 610064)

摘 要: 本文通过离子注入向钨体中注入 100 keV 氦离子, 并使用慢正电子束分析(SPBA)手段研究了不同注量的氦在钨体内的行为以及氦相关缺陷的演化. 实验结果表明: 在不同的氦注量条件下, 样品的 S-W 参数呈相同线性分布显示氦离子的注入会引入同一类型的空位型缺陷, 并且随着氦离子注量增加, S 参数的增大表明引入空位型缺陷浓度的逐渐增加. 通过与其他未退火样品对比发现样品退火后的 S 参数出现明显改变, 该结果表明相对于其他影响因素如注量, 钨中空位型缺陷更容易受热效应的影响.

关键词: 钨; 离子注入 氦 空位型缺陷 慢正电子束分析

中图分类号: TB31 **文献标识码:** A **文章编号:** 0490-6756(2016)06-1345-04

Study on the behaviour of helium and the evolution of the related defect in tungsten

WANG Yong¹, WU Shuang², DENG Ai-Hong¹, WANG Kang¹,
WANG Ling³, LU Xiao-Bo¹, ZHANG Yuan-Yuan¹

(1. College of Physical Science and Technology, Sichuan University, Chengdu 610064, China;

2. School of Electrical and Information Engineering, Southwest University for Nationalities, Chengdu 610041, China;

3. Key Laboratory for Radiation Physics and Technology of Ministry of Education, Institute of Nuclear Science and Technology, Sichuan University, Chengdu 610064, China)

Abstract: In this paper, the 100 keV helium ions were implanted in tungsten. The behaviour of helium and the evolution of the related defect have also been studied as a function of helium fluence by slow positron beam analysis (SPBA). The experimental results indicated that helium ions irradiation under different helium fluence introduces the same vacancy-type defects on the basis of the phenomenon that the S-W date presents the same linear distribution. Moreover, with the increment of helium fluence, the concentration of vacancy-type defects in the samples increased correspondingly. It is also found that the S parameter of the sample annealed has a significant change by comparing with other samples without annealing. The result suggested that vacancy-type defects are more likely to be affected by thermal treatment than other influencing factors such as fluence.

Keywords: Ion implantation; Helium; Vacancy-type defect; Slow positron beam analysis

收稿日期: 2016-03-30

基金项目: 国家自然科学基金(11275132, 11675114)

作者简介: 王勇(1989-), 男, 四川成都人, 硕士研究生, 主要从事钨中氦相关缺陷的研究. E-mail: 563994305@qq.com

通讯作者: 邓爱红. E-mail: ahdeng@scu.edu.cn

1 引言

在可控聚变实验中金属钨由于具有高熔点、高热导率、低溅射产额、高自溅射阈值、低蒸汽压和低氦滞留等特性,被选为国际热核聚变实验堆(ITER)和未来热核聚变示范电站(DEMO)的面临等离子体的第一壁和偏滤器材料^[1,2].在聚变反应堆中第一壁材料表面受氦、氘等离子体中聚变产物 α 粒子的轰击而产生高浓度的氦积累.氦是满壳层惰性元素,不溶于金属材料,同时氦原子经间隙位的迁移能非常低^[3],易通过间隙位迁移,并容易被材料中的空位、位错、晶界等捕获形成氦空位复合体,聚集形成团簇,进一步积累聚集形成氦泡,造成材料的肿胀、表面鼓泡和表层剥蚀等^[4],这些行为最终会对材料的宏观物理性质,如力学性能、机械性能等^[5]产生一定改变,从而影响钨材料在堆中的使用寿命.

有关氦在钨中行为的研究始于 1964 年^[6].最近,法国 M. F. Barthe 研究组发现氦离子注入时会形成空位型缺陷,其浓度随注量增加而上升^[7];该组还发现氦原子被周围具有高浓度单空位的氦团簇捕获,在退火时单空位的迁移和团聚可诱使氦空位复合体生长^[8];该组后续的实验结果揭示了在较高氦注量($5 \times 10^{20} \text{ m}^{-2}$)下接近表面空位团簇较大,在较低氦注量(10^{19} m^{-2})下空位团簇的尺寸更大且分布更加均匀^[9].另外,美国 Q. El-Atwani 研究组发现氦离子注入能量高于离位阈能时,空位的存在和迁移是氦在晶界处被捕获的必要条件,同时氦在晶界处被捕获后更容易形成氦泡^[10].

本文采用基于慢正电子束的多普勒展宽谱方法^[11]进一步探究了在更高氦离子注量下钨中氦相关缺陷的演化,并通过对比分析了温度和注量的变化对于注氦钨材料 S 参数值的影响程度,最后利用 VEPFIT^[12]程序对实验得到的 S 参数值进行了拟合.

2 实验

2.1 样品制备

本文实验选用的样品为商用的粉末冶金钨,其纯度为 99.95wt.%(包含杂质如:Fe、C、Mo 等),密度为 19.35 g cm^{-3} ,尺寸规格为 $15 \text{ mm} \times 15 \text{ mm} \times 1 \text{ mm}$.通过注入相同能量、不同注量的氦离子,注入能量为 100keV,注量分别是 0 m^{-2} 、 $0.7 \times 10^{21} \text{ m}^{-2}$ 、 $1.4 \times 10^{21} \text{ m}^{-2}$ 以及 $3.5 \times 10^{21} \text{ m}^{-2}$,样品编号依次为 A、B、C 以及 D,E 样品注量为 $0.7 \times 10^{21} \text{ m}^{-2}$ 经 1100°C 退火.

2.2 样品测量

本实验是在北京慢正电子束流研究平台上完成的.采集到 γ 能谱总的峰值能量范围是 504.2–517.8 keV,常使用 S 和 W 两个参数来表征湮没性质.S 参数定义为能量范围在 510.24–511.76 keV 内的计数与总的峰值(504.2–517.8 keV)计数之间的比率,S 参数反应了低动量电子即价电子或传导电子的动量信息,因此用 S 参数来描述湮没辐射能谱的低动量电子(如空位、空洞等)的多普勒展宽.W 参数定义为能量范围在 513.6–517.8 keV 和 504.2–508.4 keV 内的计数与总的峰值(504.2–517.8 keV)计数之间的比率,W 参数反应了高动量电子即芯电子的动量信息.当正电子被空位型缺陷捕获时,正电子与高动量核芯电子湮没的概率降低,因此 S 参数增大,W 参数降低^[13].采用²²Na 放射源作为正电子源,入射到样品的慢正电子能量为 0.18–20 keV 连续可调.估算正电子入射深度的经验公式^[14]如下:

$$R = \left(\frac{40}{\rho}\right)E^{1.6} \quad (1)$$

式中 R 为入射深度(单位 nm), ρ 为材料密度(单位 g/cm^3),E 为入射正电子能量(单位 keV).经过计算入射慢正电子以最大能量 20keV 入射时,其最大注入深度分为 249.47 nm.SRIM 模拟计算得到由氦离子注入产生的空位数最大峰值在约 180nm 处.

3 实验结果及讨论

3.1 氦注量对钨中缺陷的影响

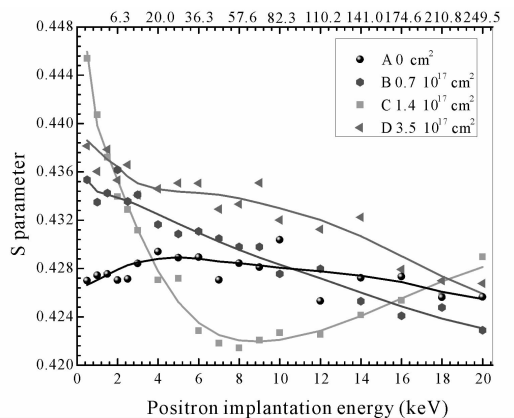


图 1 不同氦离子注量样品的 S-E 曲线,其中实线为 VEPFIT 的拟合结果

Fig. 1 The S-E curves of samples under different helium fluences, where the solid lines are the fitting results of VEPFIT program

图 1 为不同 He 注量下钨体中 S 参数随正电子注入能量的变化, 根据 SRIM 模拟结果引入的空位主要分布在 36 至 210nm 深度, 其对应正电子注入能量在 6 至 18 keV, 因此主要对该区域进行分析研究. 由图 1 可知, A 样品 S 参数值与 B 样品 S 参数值相近, 而 C 样品 S 参数出现了明显的下降. D 样品的 S 参数明显要高于 A 样品 S 参数值.

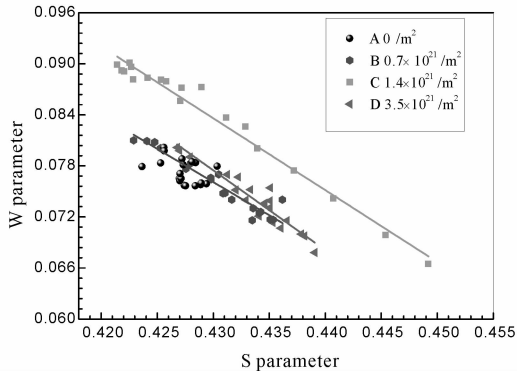


图 2 不同氦注量样品的 S-W 曲线

Fig. 2 The S-W curve of samples under different helium fluences

图 2 是不同氦注量钨体的 S-W 图. 通常 S-W 曲线来分析金属材料内部的缺陷类型和数目, 当材料中缺陷种类没有变化时, S-W 数据点呈线性分布; S-W 数据点呈现出几条线性分布, 则相应代表有几种类型的缺陷; 这是因为每一种类型的正电子湮没位能都有一组特征 S-W 数据^[13]. 由图 2 可知 A 样品的 S-W 数据点呈非线性分布, 表明纯钨中存在不止一种类型的空位型缺陷. B 样品的 S-W 数据点基本呈相同的线性分布, 表明此时 B 样品中存在同种类型的空位型缺陷. 通过对 A、B 样品 S-W 数据点比较可知氦离子的引入改变了原有空位型缺陷的多样性, 使缺陷类型趋于一致, 其原因可能是氦原子填补了样品原有的空位型缺陷, 同时在注入过程中又引入了相同类型的空位型缺陷.

C 样品的 S-W 数据值相对其他样品出现了明显的增加, 但 S-W 数据点也基本呈现出与其他注氦样品数据点相同的线性分布, 表明此时 C 样品中存在与 B、D 样品相同的缺陷类型. 通过图 1 可知 C 样品 S 参数明显下降但缺陷类型并未改变, 表明 C 样品中缺陷浓度有了明显减小, 其原因可能是氦原子不仅占据了样品中原有的空位型缺陷, 同时氦原子还占据了其自身引入的空位型缺陷, 致使样品的空位型缺陷浓度降低, 此结果佐证了之前相关研究结果^[7]: 氦离子的注入会引入空位型缺

陷, 其浓度随注量的增加而上升, 但当氦离子注量在 10^{17} 量级左右时引入的空位不再随注量增加.

由图 1 和图 2 可知随着氦离子注量的改变, 其 S-W 数据点基本呈现相同的线性分布, 缺陷类型并不会发生改变, 表明氦离子在注入钨的过程中会引入同一种空位型缺陷且其缺陷类型与氦注量无关.

3.2 注量与退火对于缺陷的影响程度对比

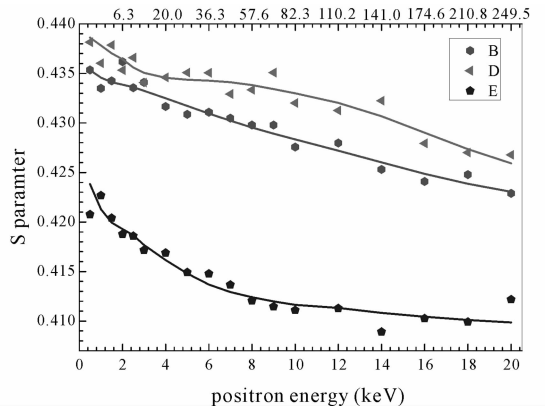


图 3 B、D 和 E 样品的 S-E 曲线, 其中实线为 VE-PFIT 拟合结果

Fig. 3 The S-E curves of sample B, C and D, where the solid lines are the fitting results of VE-PFIT program

为了比较注量和退火对钨中相关缺陷演化的影响, 本文分别对 B、D 及 E 样品进行了慢正电子束多普勒展宽测试. 图 3 是 B、D 和 E 样品的 S-E 图. 通过计算空位层平均 S 参数得 B 样品的平均 S 参数为 0.430174, D 样品平均 S 参数为 0.433404, E 样品平均 S 参数为 0.41457. 以 B 样品作为参照, 通过图 3 中三组样品 S 值的对比可知: 注量增加到 $3.5 \times 10^{21} \text{ m}^{-2}$ 对 S 值改变程度要远小于 1100°C 退火对于 S 值改变程度, 说明在该实验条件下热效应对缺陷的影响程度要远大于注量改变对缺陷的影响程度.

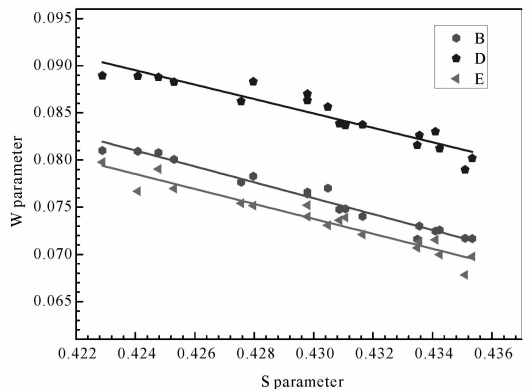


图 4 样品 B、D 和 E 的 S-W 曲线

Fig. 4 The S-W curve of B, C and D samples

图 4 为 B、D 和 E 样品的 S-W 图. 由图 4 可知三类样品的 S-W 数据点基本呈相同的线性分布, 表明样品中空位型缺陷的类型是基本一致的, 而各自 S 参数值却不同, 说明三种样品中缺陷的浓度不同. 通过 B 样品与 D 样品对比可知, 后者的 S 值大于前者, 表明氦离子注量的增加可使样品中缺陷浓度上升. 样品 E 的 S 参数出现明显降低, 同时图 4 结果显示钨中缺陷类型没有发生变化, 表明在低氦注量 ($0.7 \times 10^{21} \text{ m}^{-2}$) 下对样品进行 1100°C 退火会使缺陷浓度明显减小.

4 结 语

本文采用 SPBA 方法研究了不同氦离子注量对钨中相关缺陷演化行为的影响以及验证了热效应对钨中 S 参数的影响程度. 所得结论如下: 氦离子在注量由 $0.7 \times 10^{21} \text{ m}^{-2}$ 增加到 $3.5 \times 10^{21} \text{ m}^{-2}$ 的过程中会引入同种空位型缺陷, 并且其类型不随氦离子注量的变化而改变. 在低氦注量下高温退火并不会改变钨中缺陷类型, 通过对比可知在 1100°C 退火对缺陷的影响程度要远大于注量由 $1.4 \times 10^{21} \text{ m}^{-2}$ 变到 $3.5 \times 10^{21} \text{ m}^{-2}$ 对缺陷的影响程度. 在今后实验中可以着重通过退火来加快相关缺陷在钨中演化的过程.

参考文献:

- [1] Janeschitz G. Plasma-wall interaction issues in ITER [J]. *Journal of Nuclear Materials*, 2001, 290: 1.
- [2] Lipschultz B, Bonnin X, Counsell G, *et al.* Plasma-surface interaction, scrape-off layer and divertor physics: implications for ITER [J]. *Nuclear Fusion*, 2007, 47: 1189.
- [3] Becquat C S, Domain C. Migration energy of He in W revisited by Ab initio calculations [J]. *Phys Rev Lett*, 2006, 97: 196402.
- [4] Sychev V V, Vasserman A A, Kozlov A D, *et al.* *Thermodynamic properties of helium* [M]. New York: Springer-Verlag, 1987, 45.
- [5] Iwakiria H, Wakimoto H, Watanabe H, *et al.* Hardening behavior of molybdenum by low energy He and D ion irradiation [J]. *J Nuclear Mater*, 1998, 258: 873.
- [6] Sinha M K, Muller E W. Bombardment of tungsten with 20-keV helium atoms in a field Ion microscope [J]. *J Appl Phys*, 1964, 35: 1256.
- [7] Debelle A, Barthe M F, Sauvage T, *et al.* Helium behaviour and vacancy defect distribution in helium implanted tungsten [J]. *J Nuclear Mater*, 2007, 362: 181.
- [8] Lhuillier P. E, Belhabib T, Desgardin P, *et al.* Trapping and release of helium in tungsten [J]. *J Nuclear Mater*, 2011, 416: 13.
- [9] Backer A D, Ortiz C J, Domain C, *et al.* Spatial effect in the 800 keV ^3He implantation in W followed by isochronal annealing at 900 K [J]. *J Nuclear Mater*, 2013, 303: 87.
- [10] El-Atwani O, Hattar K, Hinks J. A, *et al.* Helium bubble formation in ultrafine and nanocrystalline tungsten under different extreme conditions [J]. *Journal of Nuclear Materials*, 2015, 488: 216.
- [11] Mills A P, Wilson R J. Transmission of 1-6-keV positrons through thin metal films [J]. *Phys Rev A*, 1982, 26: 490.
- [12] Veen A. V, Schut H, Vries J. D, *et al.* Positron beams for solids and surfaces [C]. *AIP Conf. Proc*, 1990, 218: 171.
- [13] 王少阶, 陈志权, 王波, 等. *应用正电子谱学* [M]. 武汉: 湖北科学技术出版社, 2008: 57.
- [14] Shedden B. A, Kaul F. N, Samandi M, *et al.* The role of energetic neutrals in reactive magnetron sputtering of nitrogen-doped austenitic stainless steel coatings [J]. *J Nuclear Mater*, 1997, 197: 102.