

Национальный исследовательский ядерный университет «МИФИ»

На правах рукописи

Арутюнян Зорий Робертович

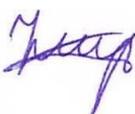
**Влияние гелия на захват ионов дейтерия в вольфраме
и вольфрамовых сплавах W-Cr-Y**

Специальность 01.04.08 – Физика плазмы

АВТОРЕФЕРАТ

Диссертации на соискание ученой степени
кандидата физико-математических наук

Автор:



Москва 2022

Работа выполнена в федеральном государственном автономном образовательном учреждении высшего образования «Национальный исследовательский ядерный университет «МИФИ»

Научный руководитель:

Гаспарян Юрий Микаэлович

кандидат физико-математических наук,
доцент отделения лазерных и плазменных технологий
офиса образовательных программ НИЯУ МИФИ

Официальные оппоненты:

Будаев Вячеслав Петрович

доктор физико-математических наук,
ведущий научный сотрудник отдела токамака Т-10,
Федеральное государственное бюджетное учреждение «Национальный исследовательский центр «Курчатовский институт»

Бачурин Владимир Иванович

доктор физико-математических наук, доцент
ведущий научный сотрудник лаборатории диагностики микро- и наноструктур,
Ярославский Филиал Федерального государственного бюджетного учреждения науки Физико-технологического института Российской академии наук

Душик Владимир Владимирович

кандидат химических наук,
заведующий лабораторией гетерогенного синтеза тугоплавких соединений,
Федеральное государственное бюджетное учреждение науки Институт физической химии и электрохимии им. А.Н. Фрумкина Российской академии наук

Защита состоится « 14 » сентября 2022 г. в 15:00 на заседании диссертационного совета МИФИ.01.04 федерального государственного автономного образовательного учреждения высшего образования «Национальный исследовательский ядерный университет «МИФИ» (115409, г. Москва, Каширское шоссе, 31).

С диссертацией можно ознакомиться в библиотеке и на сайте <http://ds.mephi.ru> федерального государственного автономного образовательного учреждения высшего образования «Национальный исследовательский ядерный университет «МИФИ».

Автореферат разослан «__»_____ 2022 г.

Ученый секретарь

диссертационного совета,

кандидат физико-математических наук

В.В. Краснов

ОБЩАЯ ХАРАКТЕРИСТИКА РАБОТЫ

Актуальность темы исследования

Топливом в будущих термоядерных установках (ТЯУ) будет дейтерий-тритиевая смесь. Тритий является радиоактивным, поэтому контроль за его накоплением в стенках ТЯУ имеет первостепенное значение с точки зрения безопасности, а характеристики поведения изотопов водорода в материалах важны для определения пригодности материала для применения в ТЯУ. Обращенные к плазме элементы (ОПЭ) стенки будут подвергаться воздействию интенсивных потоков частиц изотопов водорода, а также гелия и нейтронов, возникающих в процессе реакции синтеза.

Вольфрам будет использован в ITER (международный экспериментальный термоядерный реактор) в качестве материала ОПЭ в области дивертора, подверженного максимальным потокам частиц. Основными преимуществами вольфрама являются низкий уровень накопления изотопов водорода, низкий коэффициент распыления, высокая температура плавления и теплопроводность. В будущих реакторах рассматривается возможность использования вольфрама и в качестве защиты основной части стенки (первая стенка).

В термоядерных реакторах потоки тепла и частиц на ОПЭ будут еще больше, чем в ITER, а, следовательно, более жесткие требования к используемым материалам. Уже сейчас разрабатываются новые сплавы и композиционные материалы на основе вольфрама, более устойчивые к тепловым и нейтронным потокам. Перспективным считается использование самопассивирующихся сплавов вольфрама с пониженным термоокислением W-Cr-Y в качестве защиты для первой стенки.

Как показывают эксперименты, наличие примеси гелия в водородной плазме существенно влияет на захват водорода в вольфраме. Под действием гелиевой плазмы на поверхности вольфрама может формироваться сильно развитая наноструктурированная поверхность, что оказывает дополнительное влияние на эффективность захвата водорода.

Таким образом, исследование взаимодействия гелия с вольфрамом и его сплавами, включая влияние гелия на накопление изотопов водорода в термоядерных реакторах, представляет повышенный интерес.

Цели и задачи диссертационной работы

Целью данной работы является выявление закономерностей влияния облучения ионами гелия на эффективность захвата и удержание дейтерия в вольфраме и вольфрамовых сплавах W-Cr-Y. Для достижения поставленной цели необходимо было решить следующие задачи:

1. Реализация возможности облучения образцов на установке МЕДИОН двумя масс-сепарированными пучками ионов гелия и дейтерия, и проведения *in-situ* термодесорбционных измерений.
2. Проведение сравнительного анализа накопления гелия в вольфраме в широком диапазоне температур (300 – 1200 К), характерных для ТЯУ, и доз облучения ($10^{19} - 10^{22}$ He/m²).
3. Экспериментальное исследование влияния модификации поверхности вольфрама при облучении ионами гелия с различной энергией (150 – 3000 эВ) на эффективность захвата ионов дейтерия. Моделирование полученных результатов с помощью кода TMAP7 для оценки энергии выхода дейтерия из ловушек.
4. Исследование поведения изотопов гелия (⁴He, ³He) в вольфраме при последовательном облучении для анализа характера удержания после достижения насыщения.
5. Измерение параметров и изучение закономерностей захвата дейтерия в вольфрамовом сплаве W-11.6Cr-0.6Y.

Научная новизна

В рамках работы впервые проведено систематическое исследование накопления гелия в вольфраме в широком диапазоне доз ($10^{19} - 10^{22}$ He/m²) с применением *in-situ* термодесорбционной спектроскопии (ТДС). Часть термодесорбционных измерений проведена до высоких температур (до 2550 К),

что превышает на 1000 К возможности большинства установок по ТДС и важно для полного анализа выхода захваченного гелия.

Продемонстрирован эффект изотопного обмена атомов гелия в вольфраме в экспериментах с применением двух изотопов гелия (^3He и ^4He).

Впервые исследовано накопление гелия и дейтерия в перспективном сплаве W-11.6Cr-0.6Y, а также в вольфраме с наноструктурированной поверхностью («вольфрамовый пух»).

Научная и практическая значимость работы

Полученные результаты могут быть использованы при оценке накопления трития и определении рабочих режимов работы термоядерных установок, а также для верификации компьютерных кодов, используемых для моделирования различных аспектов взаимодействия плазмы с поверхностью. Модернизация установки МЕДИОН и методика проведения измерений потоков десорбции молекул близкой массы позволит проводить в дальнейшем комплексные исследования одновременного взаимодействия двух сортов ионов с поверхностью различных перспективных материалов.

Положения, выносимые на защиту

1. Результаты измерения термодесорбции гелия из вольфрама до температуры 2500 К после облучения ионным пучком, позволившие определить эффективность захвата гелия при малых дозах облучения ($10^{19} - 10^{20}$ He/см²) в широком диапазоне температур (300 – 1200 К).
2. Эффект снижения при взаимодействии с воздухом температуры выхода захваченного при ионном внедрении в вольфрам гелия, обнаруженный из сравнения *in-situ* и *ex-situ* термодесорбционных измерений после идентичных облучений.
3. Экспериментальные результаты изучения термодесорбции изотопов гелия из вольфрама при последовательном облучении ионами ^4He и ^3He с энергией 3 кэВ, демонстрирующие высокую скорость изотопного обмена при комнатной и повышенных температурах облучения после достижения предельной концентрации в поверхностном слое.

4. Экспериментальная зависимость эффективности захвата дейтерия в поверхностных слоях вольфрама и сплава W-11.6Cr-0.6Y от дозы ($10^{19} - 10^{22}$ He/ m^2) предварительного облучения ионами гелия с энергией 3 кэВ, свидетельствующая о резком снижении эффективности захвата при достижении насыщения поверхностного слоя гелием.
5. Экспериментальные результаты о влиянии образования на поверхности вольфрама наноструктурированной поверхности под действием высокотемпературного облучения гелиевой плазмой на захват ионов дейтерия, показывающие определяющую роль концентрации гелия и индуцированных гелием дефектов в повышенном захвате дейтерия.
6. Дозовая и температурная зависимости накопления дейтерия в сплаве W-11.6Cr-0.6Y, демонстрирующие повышенную по сравнению с чистым вольфрамом скорость накопления, и термодесорбционные измерения с разной скоростью нагрева, позволившие вычислить энергию выхода дейтерия из ловушек ($E = 2,21 \pm 0,05$ эВ), определяющих повышенный захват.

Достоверность и апробация результатов

Достоверность полученных результатов подтверждена повторяемостью результатов при выполнении исследований, а также использованием надежных методов измерения с регулярным проведением калибровки измерения потока десорбции. Моделирование экспериментальных данных проведено с помощью верифицированного кода TMAP7, широко используемого для подобных задач. Результаты работы были представлены на международных конференциях и опубликованы в реферируемых журналах.

- XXI, XXII, XXIII, XXV Международные конференции «Взаимодействие плазмы с поверхностью» (Москва, 2018 г., 2019 г., 2020 г., 2022 г.)
- XXIII, XXV Международные конференции «Взаимодействие ионов с поверхностью» (Москва, 2017 г., Ярославль, 2021 г.)
- 15th International Workshop on Hydrogen Isotopes in Fusion Reactor Materials (Корея, 2021)

- 20th International Conference on Fusion Reactor Materials (ICFRM-20, Мадрид, Испания, 2021г.)
- XLVI Международная конференция по физике плазмы и управляемому термоядерному синтезу (Звенигород, 2020 г.)
- 18th International Conference on Fusion Reactor Materials (ICFRM-18, Аомори, Япония, 2017 г.)
- 16-я Международная конференция по обращенным к плазме материалам и компонентам для применения в термоядерном синтезе (Дюссельдорф, Германия, 2017 г.)

Публикации по теме диссертации

По теме диссертации опубликовано 9 работ в рецензируемых изданиях, из них 2 опубликованы в журналах из списка ВАК РФ, и 7 входят в базы данных Scopus и Web of Science.

Личный вклад автора

Сборка и запуск новых узлов установки, проведение экспериментов по облучению материалов дейтерием и гелием на установке МЕДИОН, измерению термодесорбции, обработка экспериментальных данных и моделирование с помощью кода TMAP7 были выполнены лично автором или при непосредственном участии автора.

Структура и объем диссертации

Диссертация состоит из введения, шести глав и заключения. Объем диссертации составляет 147 страниц, включая 66 рисунков, 2 приложения, 3 таблицы. Список литературы включает 196 наименований.

КРАТКОЕ СОДЕРЖАНИЕ РАБОТЫ

Во введении обоснована актуальность темы диссертации, обозначены цель и основные задачи работы, показана научная новизна и практическая значимость работы, сформулированы положения, выносимые на защиту.

В первой главе проведен литературный обзор современного состояния исследований взаимодействия изотопов водорода и гелия с вольфрамом. Вольфрам рассматривается в качестве материала ОПЭ в будущих ТЯУ [1,2].

Рассмотрены преимущества и недостатки использования вольфрама, а также разрабатываемого в Научном центре Юлих (Германия) сплава W-11.6Cr-0.6Y как альтернативного вольфраму материала.

В силу крайне низкой растворимости, накопление водорода в вольфраме определяется наличием дефектов в кристаллической решетке, которые играют роль ловушек для водорода. Представлены экспериментальные и теоретические значения энергии связи водорода с различными дефектами, как основной характеристики, описывающей удержание водорода.

Отмечается, что в подавляющей части существующих экспериментов по облучению вольфрама ионами гелия или гелиевой плазмой не определяется интегральное количество захваченного гелия, что является важным фактором процесса модификации поверхности.

Проанализированы существующие экспериментальные данные по облучению вольфрама ионами дейтерия, а также влиянию примеси гелия в водородной плазме на скорость накопления водорода в вольфраме. Основным объемом экспериментальных данных относится к интервалу доз $10^{21} - 10^{27}$ част./м², где наблюдаемое накопление дейтерия растет пропорционально квадратному корню от дозы облучения ($\sim \Phi^{1/2}$). При этом особенности захвата дейтерия в вольфрам, предоблученный ионами гелия, при малых дозах облучения ($< 10^{21}$ част./м²) не исследованы, хотя на этой стадии происходит наиболее существенное изменение поверхностного слоя и динамики накопления дейтерия.

Большое внимание в последние годы уделялось исследованию механизмов формирования на поверхности вольфрама наноструктурированной поверхности, состоящей из многочисленных тонких волокон толщиной порядка 20 нм («вольфрамовый пух»), под действием мощных потоков гелиевой плазмы [3,4]. При этом влияние такой структуры на накопление дейтерия не исследовалось.

Приведены преимущества использования вольфрамовых сплавов W-11.6Cr-0.6Y в качестве материала ОПЭ [5]. В первую очередь, это устойчивость к окислению в аварийных ситуациях с потерей охлаждения, что подавляет возможное интенсивное испарение вольфрама. Накопление водорода в

новом сплаве W-11.6Cr-0.6Y не исследовалось, что является одним из важных факторов при выборе материала в качестве ОПЭ в ТЯУ.

Во второй главе описываются использованные в работе методы и экспериментальные установки для исследования взаимодействия гелия и дейтерия с материалами. Для выполнения поставленных задач в качестве основного метода экспериментальных исследований был выбран метод термодесорбционной спектроскопии (ТДС), позволяющий получать информацию о количестве и характере удержания газов в вольфраме, делать выводы о закономерностях захвата водорода. Основная часть работы выполнена на установке МЕДИОН (НИЯУ МИФИ), общая схема которой представлена на рисунке 1. Установка была существенно модернизирована.

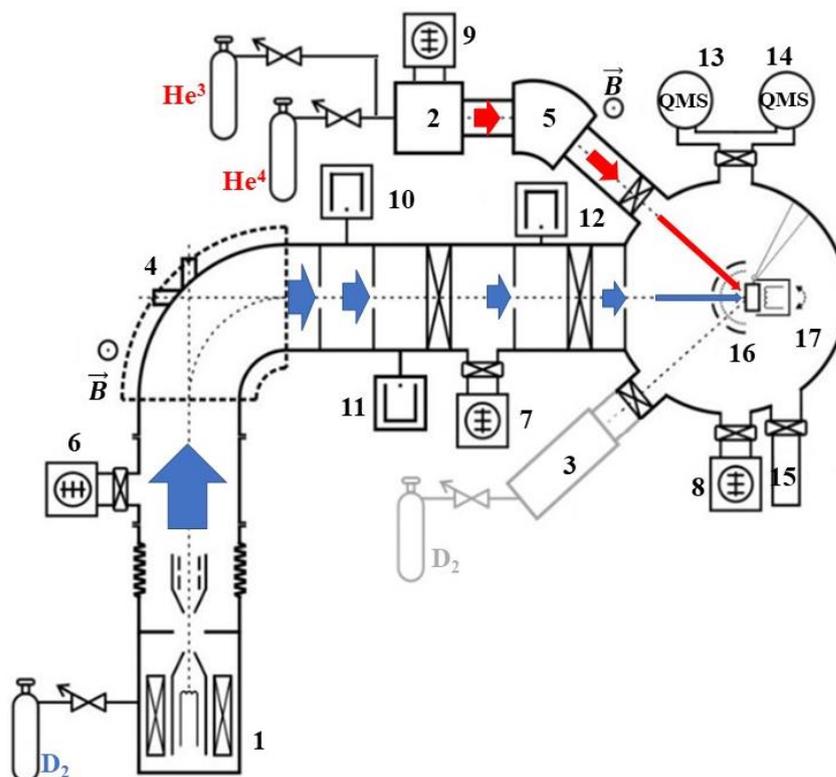


Рисунок 1 – Схема установки МЕДИОН: 1 – источник ионов дейтерия, 2 – источник ионов гелия, 3 – источник атомарного водорода (в данной работе не использовался), 4-5 – секторные магниты для сепарации ионов, 6-9 – турбомолекулярные насосы, 10-12 – магниторазрядные насосы, 13-14 – квадрупольные масс-анализаторы, 15 – течь гелиевая Гелит-1, 16 – трехпучковая диафрагма, 17 – держатель образца с нагревательной системой

К основной линии транспортировки пучка, позволяющей проводить облучение образцов моноэнергетическим масс-сепарированным пучком ионов дейтерия, была добавлена линия транспортировки пучка для независимого облучения ионами гелия.

В данной работе ионы дейтерия из области горения разряда ускорялись и фокусировались на выходе из источника ионов, затем поворачивались секторным магнитом. Облучение проводилось ионами D_3^+ с энергией 2 кэВ (667 эВ/D, что ниже образования устойчивой пары Френкеля) с дозами облучения от 10^{19} до 5×10^{21} D/м².

Благодаря системе глубокой дифференциальной откачки возможно проводить *in-situ* ТДС измерения с минимальным фоном в камере.

Вторая линия транспортировки пучка также оснащена системой фокусировки, сепарирующим магнитом, диафрагмой дифференциальной откачки, и позволяет облучать последовательно образцы ионами $^4\text{He}^+$ и $^3\text{He}^+$ с энергией 0,4 – 3 кэВ без торможения на мишени. Достигаемые дозы облучения ионами He^+ порядка $10^{19} - 10^{22}$ He/м².

Для экспериментов был разработан держатель с нагревателем, позволяющий облучать образцы при повышенных температурах, а также проводить *in-situ* ТДС анализ до температуры 1500 К без выноса образца на атмосферу.

В экспериментах, где требовался ТДС анализ и отжиг до высоких температур (> 1500 К), использовалась установка ТДС-стенд (НИЯУ МИФИ). Эта сверхвысоковакуумная установка предназначена для *ex-situ* (после контакта образца с атмосферой) ТДС исследования захвата газов в образцы до температур 2550 К, что важно для полного анализа гелия в вольфраме.

Описана методика разрешения близких по массе сигналов $D_2/ ^4\text{He}$ ($m = 4$) и $\text{HD} / ^3\text{He}$ ($m = 3$), использующая разницу в потенциале ионизации частиц и реализованная с помощью квадрупольного масс-анализатора Hiden Hal 51.

Описаны установки по плазменному облучению вольфрама гелием, в частности, приводящие к формированию наноструктурированной поверхности.

Методом рентгеновской фотоэлектронной спектроскопии (РФЭС) проводился анализ элементного состава поверхностных слоев облученных сплавов (МФТИ). Модификация поверхности при ионном и плазменном облучении исследовалась с помощью сканирующего электронного микроскопа (НИЯУ МИФИ и НИИ биомедицинской химии им. В.Н. Ореховича).

Моделирование экспериментально полученных ТДС спектров проводилось с помощью кода ТМАР7, описывающего одномерную задачу диффузии в материале с учетом дефектов, а также внедрение ионов и десорбцию из материала.

В третьей главе представлены результаты экспериментов по облучению вольфрама ионами гелия.

На рисунке 2 показаны *ex-situ* ТДС спектры выхода гелия из вольфрама, облученного при комнатной температуре с энергиями ионов 400 эВ и 3 кэВ (порог образования пар Френкеля ионами гелия ~ 500 эВ) в диапазоне доз $10^{19} - 2.3 \times 10^{22}$ He/m². Показано, что на ранней стадии облучения в интервале доз $10^{19} - 10^{20}$ He/m² в обоих случаях наблюдается преимущественно высокотемпературный (> 1200 K) выход гелия.

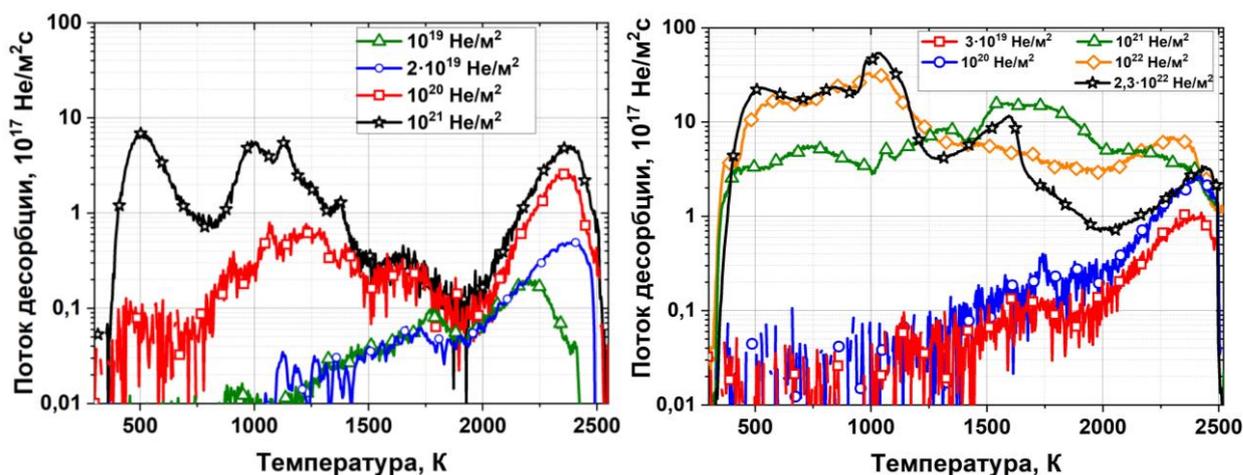


Рисунок 2 – Спектры *ex-situ* ТДС выхода гелия (⁴He) из вольфрама, облученного при комнатной температуре: а – 400 эВ, б – 3 кэВ

С увеличением дозы облучения 10^{21} He/m² и выше появляются низкотемпературные пики, что связано с достижением предельной концентрации гелия в более сильных ловушках, ослаблением связей в сильно напряженном слое

и упрощением выхода гелия из приповерхностных слоев при развитии морфологии поверхности.

Накопление гелия в вольфраме при разных условиях облучения представлены на рисунке 3. Благодаря высокотемпературному ТДС анализу до 2500 К показана высокая эффективность захвата гелия близкой к 100 % (с учетом коэффициента отражения) при низкой дозе облучения, что объясняется высокой концентрацией центров захвата и высокой энергией связи гелия с дефектами. Предельная концентрация (насыщение) гелия наблюдается при дозах облучения выше 10^{21} He/m^2 , что позволяет экстраполировать данные экспериментов с ионами 3 кэВ на низкоэнергетическое плазменное облучение с большой дозой.

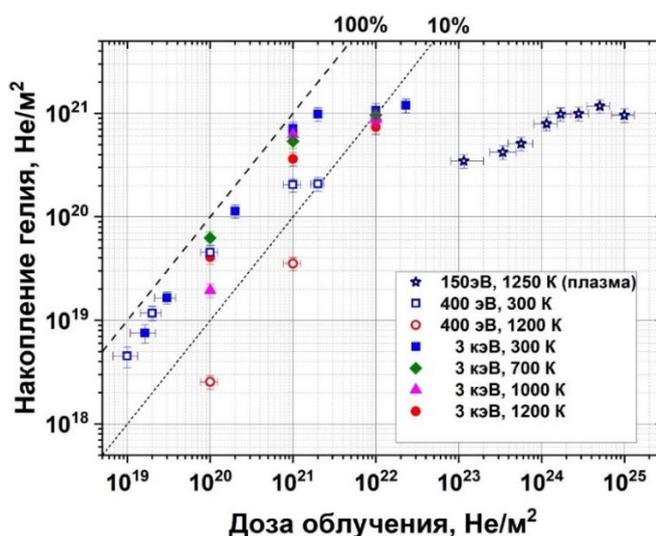


Рисунок 3 – Накопление гелия в вольфраме, облученного ионным пучком и плазмой

Ионное облучение энергиями 400 эВ и 3 кэВ при комнатной температуре выше дозы 10^{21} He/m^2 образует блистеры на поверхности вольфрама, как показано на рисунке 4, что совпадает с областью насыщения при захвате He. Средний размер блистеров падает с уменьшением энергии падающих ионов. При дозе облучения $\sim 10^{22}$ He/m^2 ионами с энергией 3 кэВ на поперечном сечении образца наблюдается хорошо модифицированный слой на поверхности толщиной ~ 70 нм.

С увеличением температуры облучения морфология поверхности, в целом, сохраняется до 1000 К. При 1200 К наблюдается формирование губчатой поверхности (рисунок 5). Рост пуха при облучении мощными плазменными

потоками начинается примерно при такой же температуре, что говорит о существенном увеличении подвижности атомов вольфрама в этом диапазоне.

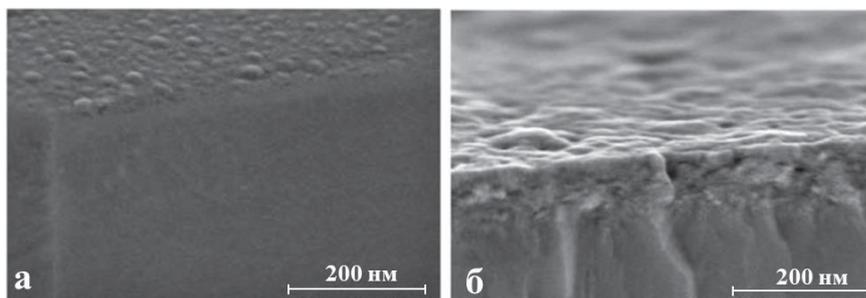


Рисунок 4 – Изображения СЭМ поперечного сечения (скол) вольфрама, облученного при комнатной температуре ионами He^+ : а – энергия ионов 400 эВ, набранная доза $2.3 \times 10^{21} \text{ He}/\text{m}^2$, б – энергия ионов 3 кэВ, набранная доза $2.3 \times 10^{22} \text{ He}/\text{m}^2$

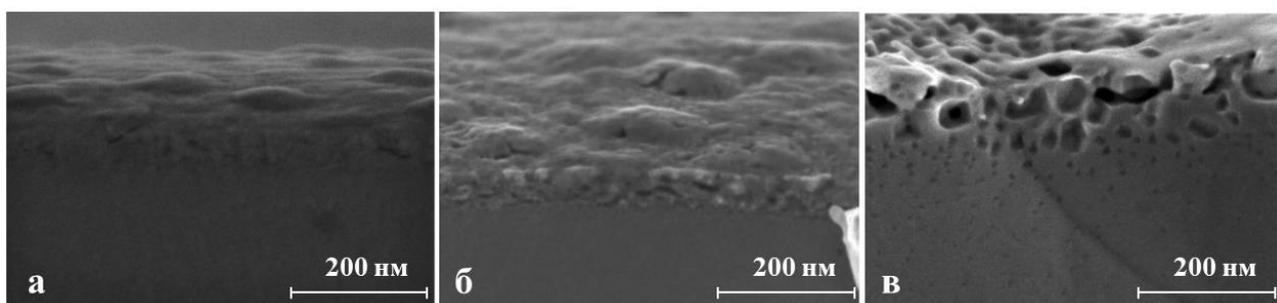


Рисунок 5 – СЭМ изображения поперечного сечения (скол) образцов вольфрама, облученных ионами 3 кэВ He^+ дозой $10^{22} \text{ He}/\text{m}^2$ при разных температурах: а – 700 К, б – 1000 К, в – 1200 К

На рисунке 6 представлены *ex-situ* ТДС спектры выхода гелия из вольфрама, облученного ионами изотопов гелия (^3He , ^4He) с энергией 3 кэВ при комнатной температуре. Спектры термодесорбции из *W* разных изотопов гелия практически совпадают и хорошо воспроизводимы (рисунок 6а). Свыше $5 \times 10^{21} \text{ He}/\text{m}^2$ разница в дозе также не играет существенной роли, т.к. уже достигается насыщение.

В ходе проведенных экспериментов обнаружено (рисунок 6б), что по сравнению с *in-situ* ТДС, на спектрах *ex-situ* ТДС всегда наблюдается повышенный выход гелия при низких температурах (до 700 К), что, очевидно, обусловлено контактом с воздухом. Причем, эта область присутствует даже после предварительного *in-situ* ТДС до 1500 К (синяя линия).

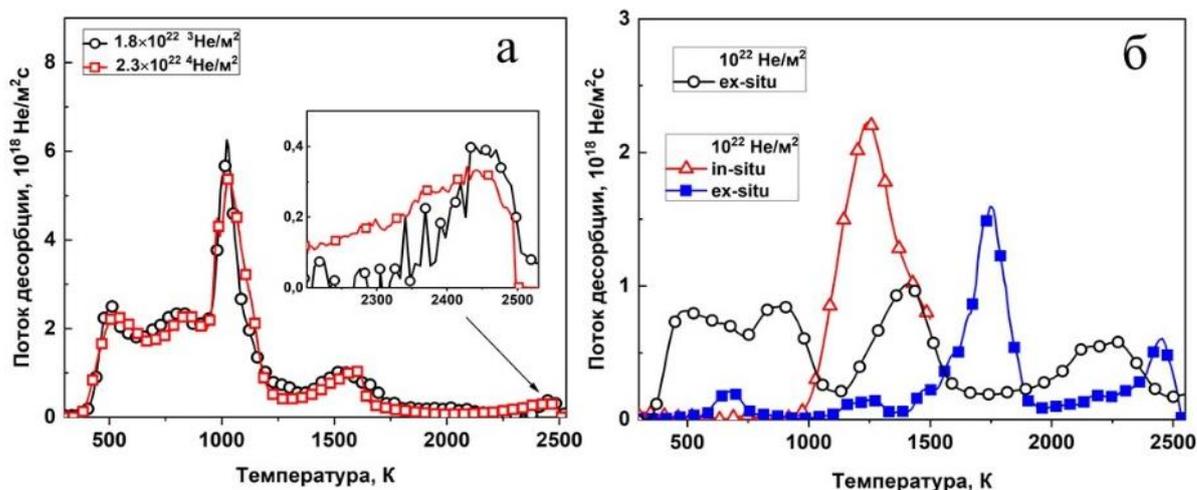


Рисунок 6 – ТДС спектры выхода гелия: а – *ex-situ* сравнение изотопов гелия при температуре облучения 300 К, б – *ex-situ* и *in-situ* ТДС спектры при температуре облучения 1000 К

В следующей серии экспериментов, образцы вольфрама вначале облучались ионами ${}^4\text{He}^+$ до дозы насыщения $5 \times 10^{21} {}^4\text{He}/\text{m}^2$, затем проводилось облучение ионами ${}^3\text{He}^+$ в диапазоне доз $(1-5) \times 10^{21} {}^3\text{He}/\text{m}^2$. Наблюдается уменьшение всех пиков ${}^4\text{He}$ и рост пиков ${}^3\text{He}$ в тех же местах (рисунок 7). Это наблюдается как на спектрах *in-situ* ТДС, так и в случае *ex-situ* ТДС.

Таким образом, можно говорить о замещении ${}^4\text{He}$ атомами ${}^3\text{He}$ во всех ловушках.

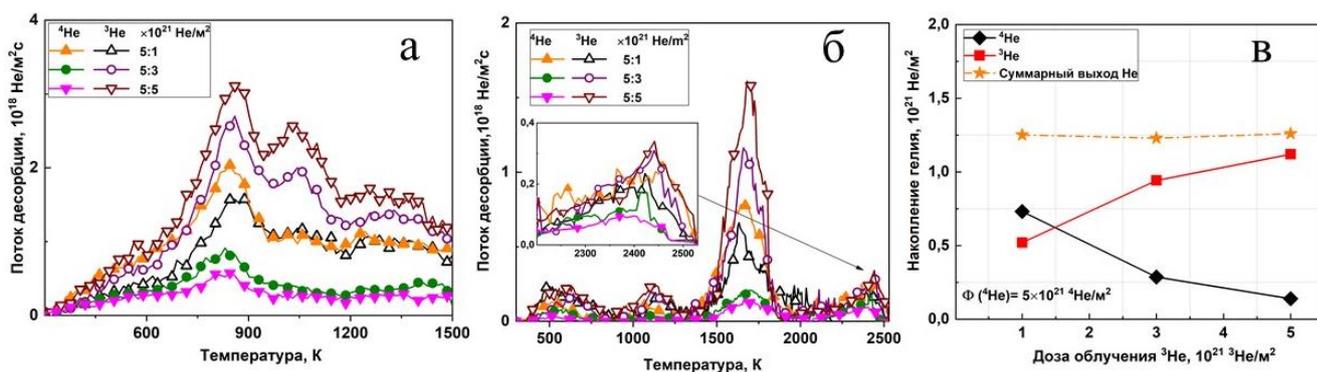


Рисунок 7 – Выход изотопов гелия при последовательном облучении во время ТДС: а – *in-situ* ТДС, б – последующий 2-й *ex-situ* ТДС, в – выход изотопов гелия

Исследование влияния температуры облучения на эффект замещения изотопов гелия показало, что эффект замещения сохраняется, а с повышением температуры эффективность замещения постепенно увеличивается (рисунок 8).

Для описания экспериментальных данных предложено математическое описание, предполагающее наличие как термически активируемых процессов, так и безактивационных процессов.

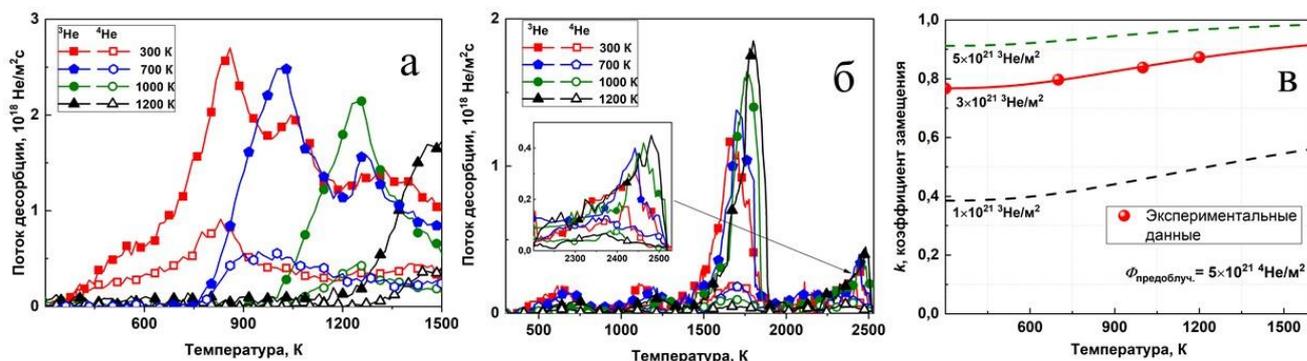


Рисунок 8 – Выход изотопов гелия после последовательного облучения при разных температурах образца: а – *in-situ* ТДС, б – последующий 2-й *ex-situ* ТДС, в – зависимость эффективности замещения от температуры

В рамках математической модели поток атомов гелия из образца в ходе облучения пропорционален количеству захваченных атомов, а эффективность изотопного обмена (k) имеет следующий вид:

$$k = (N_0 - N(t)) / N_0 = 1 - \exp(-\Phi \times (A \times \exp(-E_a / k_B T) + B) / F),$$

где $N(t)$ – текущее значение ^4He в образце во время облучения ионами ^3He , N_0 – начальное количество ^4He при $t = 0$, Φ – доза облучения, F – поток ионов на образец, A и B – экспериментальные параметры, E_a – энергия активации, k_B – постоянная Больцмана, T – температура облучения.

Полученное уравнение хорошо описывает экспериментальные данные с энергией активации E_a равной 0,2 эВ. Это значение близко к энергии миграции гелия в вольфраме. Вероятность замещения имплантированными ионами захваченных ранее в поверхностном слое атомов гелия оказалась близка к единице.

В четвертой главе исследовался захват дейтерия в поверхностном слое вольфрама при разных дозах предварительного облучения ионами гелия (рисунок 9). Без предварительного облучения ионами гелия выход дейтерия в ходе ТДС был почти неразличим от уровня фонового сигнала. Увеличение захвата

дейтерия заметно уже после первого предоблучения ионами гелия дозой 10^{19} He/m², что связано с появлением дефектов. С увеличением дозы предоблучения гелием положение пика термодесорбции дейтерия смещается в область больших температур, что связывается с увеличением размера гелий-вакансионных комплексов ($V_m\text{He}_n$).

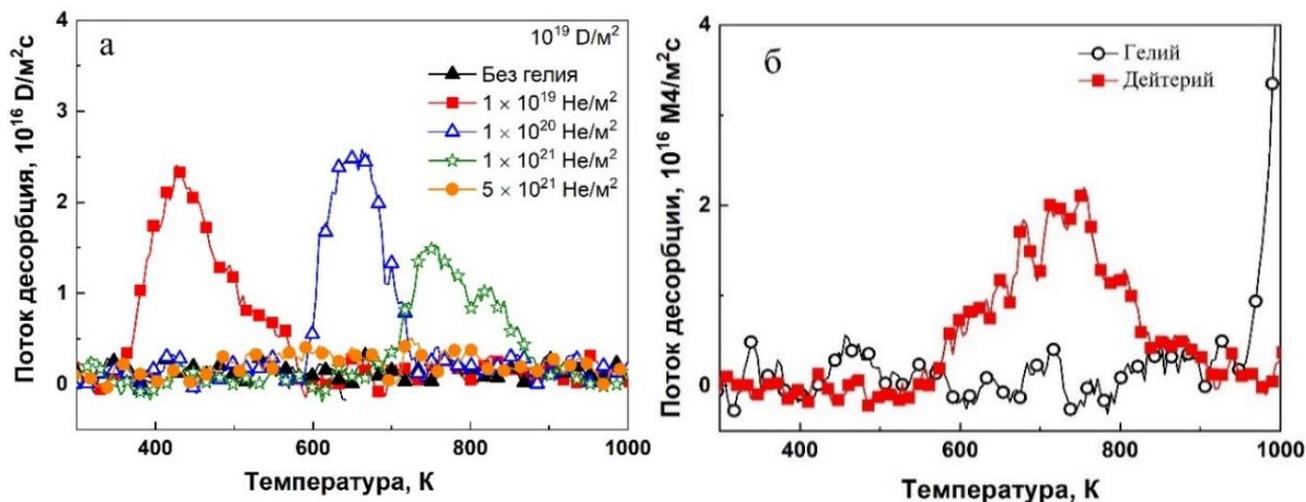


Рисунок 9 – ТДС спектры: а – выхода дейтерия из образца, предоблученного ионами 3 кэВ He⁺ в интервале доз $10^{19} - 5 \times 10^{21}$ He/m², б – выход дейтерия и гелия из того же образца после последнего ТДС без предоблучения He⁺

При дозе предоблучения ионами гелия до 5×10^{21} He/m² выход дейтерия становится ниже предела обнаружения. Содержание гелия при этих дозах достигает уровня насыщения, как показано ранее (рисунок 3). Предполагается, что насыщение гелием не оставляет свободных для дейтерия ловушек с достаточной энергией связи и ускоряет транспорт дейтерия к поверхности.

После окончания серии, представленной на рисунке 9а, было проведено повторное облучение ионами дейтерия без дополнительного предоблучения ионами гелия. Частичный выход гелия привел к повышению захвата дейтерия, выход которого в ходе ТДС имеет максимум при температуре 720 К. Сделан вывод, что освободившиеся атомы дейтерия оказались в ловушках ранее занятыми атомами гелия. Такие места захвата имеют высокую энергию связи с дейтерием, характерную для поверхности $V_m\text{He}_n$ комплексов и гелиевых пузырьков с пониженной концентрацией гелия.

В коде TMAP7 были смоделированы все основные этапы эксперимента: облучение ионами дейтерия, выдержка в вакууме и ТДС (рисунок 10). Рассматривался однородный вольфрам толщиной 50 мкм (толщина самого образца) с повышенной концентрацией ловушек в верхнем поверхностном слое толщиной 60 нм. Варьируемыми параметрами были энергия освобождения и концентрация ловушек в предварительно поврежденном слое.

На основании расчетов были получены оценки энергии связи дейтерия с ловушками для разных доз гелиевого облучения. Увеличение дозы приводит к росту $V_m\text{He}_n$ комплексов и увеличению энергии выхода D с 1,16 – 1,48 эВ при 10^{19} He/м² до 2,08 – 2,27 эВ при 10^{21} He/м².

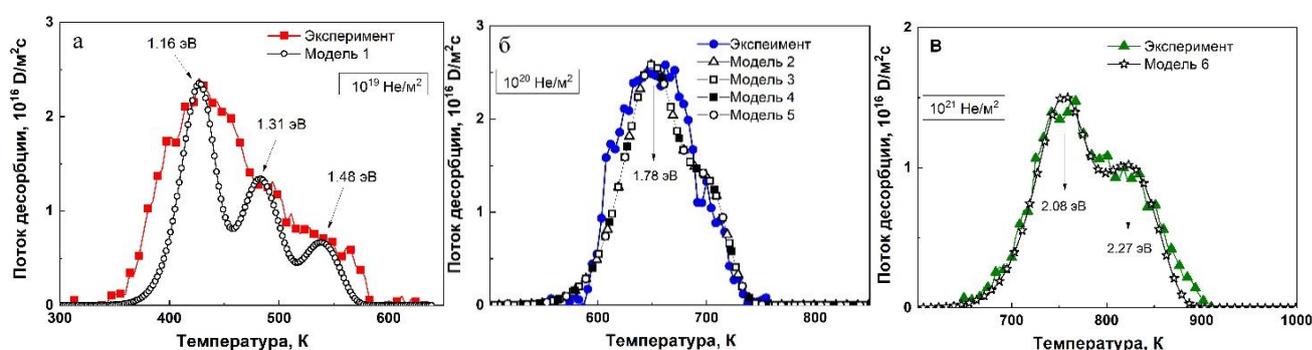


Рисунок 10 – ТДС спектры и модели TMAP7 выхода дейтерия при дозе облучения 10^{19} D/м² в случае предварительного облучения ионами гелия одного и того же образца при дозах: а – 10^{19} He/м², б – 10^{20} He/м², в – 10^{21} He/м²

В пятой главе изложены результаты экспериментов по исследованию захвата ионов дейтерия в вольфрам с наноструктурированной поверхностью (пух), образованной при плазменном облучении дозой в интервале 10^{24} – 10^{25} He/м² при температуре ~ 1250 К.

На рисунке 11 представлены этапы изменения морфологии поверхности после отжига при различных температурах в диапазоне 1000 – 1600 К. При отжиге до 1000 К значительных изменений в морфологии поверхности не наблюдается, хотя часть гелия десорбируется. При температуре отжига выше 1200 К наблюдается усадка пуха, объединение отдельных волокон, и уже при температуре 1600 К поверхность становится практически гладкой.

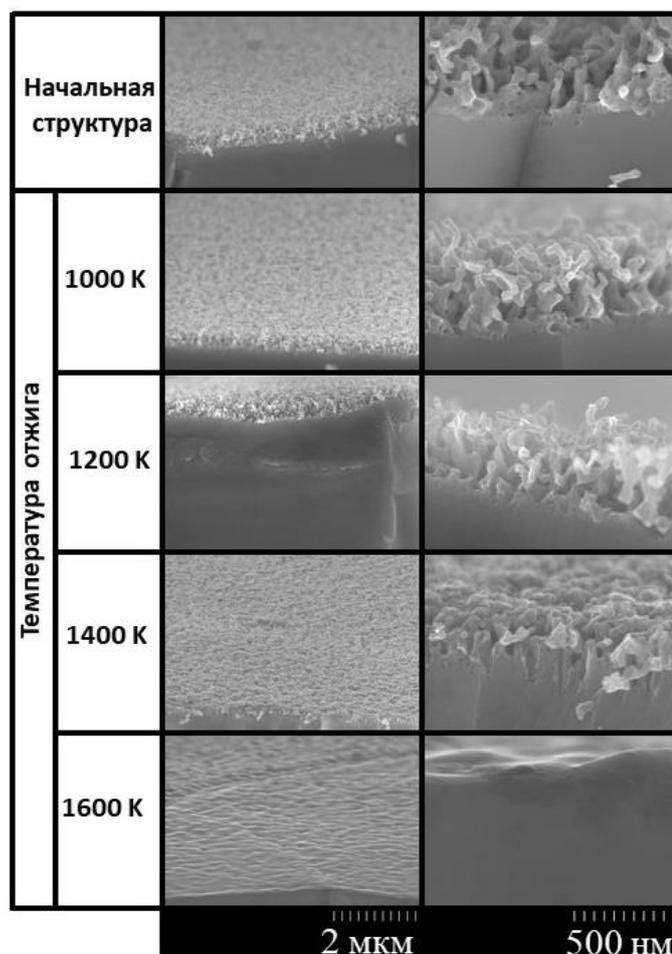


Рисунок 11 – Модификация структуры вольфрамового пуха на сколотых образцах (W_f) после отжига в течение 30 минут при температурах 1000, 1200, 1400 и 1600 К

Эффективность захвата дейтерия исследовалась на всех стадиях отжига (рисунок 12) в отдельном эксперименте. При первой имплантации ионов дейтерия с энергией 670 эВ и дозе 10^{19} D/м² десорбция дейтерия происходит при высоких температурах с максимумом около 800 К, что говорит о наличии достаточно сильных центров захвата. При этом, интегральное количество захваченного дейтерия не велико, что говорит о высокой заполненности гелием этих ловушек. Кратковременный отжиг до 1000 К приводит к частичному выходу гелия, а также еще большему снижению захвата дейтерия. Такого не наблюдалось для экспериментов с гладкой поверхностью (рисунок 9), что говорит о более эффективном отжиге ловушек в наноструктурированном слое.

Отжиг при температуре 1200 К приводит к увеличению захвата дейтерия, т.е. появлению большого числа ловушек с относительно небольшой энергией связи, что коррелируют с постепенным изменением структуры поверхности. Далее, в

интервале температур 1200 – 1600 К наблюдается увеличение вклада более сильных ловушек. Отжиг при температуре 1600 К приводит к сглаживанию поверхности и снижению накопления дейтерия, что, в данном случае, может объясняться увеличением коэффициента отражения ионов дейтерия от гладкой поверхности.

На основании этих экспериментов сделан вывод, что главным фактором, определяющим захват дейтерия в образец, предварительно облученный гелиевой плазмой, является концентрация гелия и вызванных им дефектов. Наличие развитого рельефа на поверхности вольфрама имеет вторичное значение, но также может увеличивать захват дейтерия за счет уменьшения коэффициента отражения ионов от поверхности.

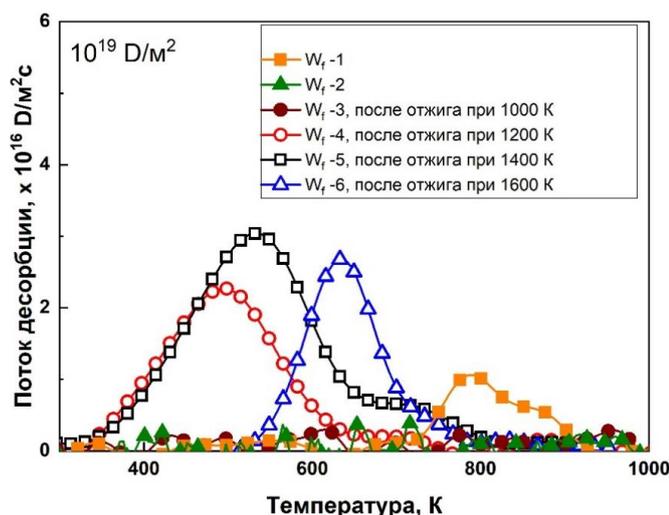


Рисунок 12 – Выход дейтерия из вольфрама с пухом во время ТДС при облучении ионами D^+ малой дозой 10^{19} D/m^2

Шестая глава посвящена захвату и накоплению дейтерия в вольфрамовых сплавах W-Cr-Y. Большая часть экспериментов выполнена с сплавом W-11.6Cr-0.6Y. Проведен сравнительный анализ накопления дейтерия при облучении сплава W-11.6Cr-0.6Y и чистого вольфрама ионами D_3^+ с энергией 2 кэВ в диапазоне температур 300 – 900 К. Обнаружен дополнительный высокотемпературный пик с максимумом при температуре $\sim 960 \text{ K}$ (рисунок 13). Места захвата, связанные с этим пиком, играют основную роль в повышении накопления дейтерия, особенно при высоких температурах облучения.

В серии идентичных экспериментов с разной скоростью нагрева в ходе ТДС (рисунок 14) проанализировано смещение положения высокотемпературного пика, соответствующего ловушкам с высокой энергией связи, и было определено значение энергии выхода дейтерия из таких ловушек без использования подгоночных параметров, которое составило $2,21 \pm 0,05$ эВ. Предполагается, что полости в материале являются источником таких ловушек.

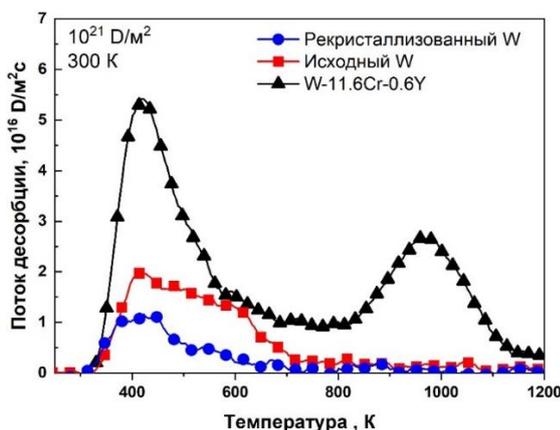


Рисунок 13 – Сравнение спектров ТДС выхода дейтерия из чистого вольфрама и сплава W-11.6Cr-0.6Y, облученных ионами дейтерия дозой 10^{21} D/m²

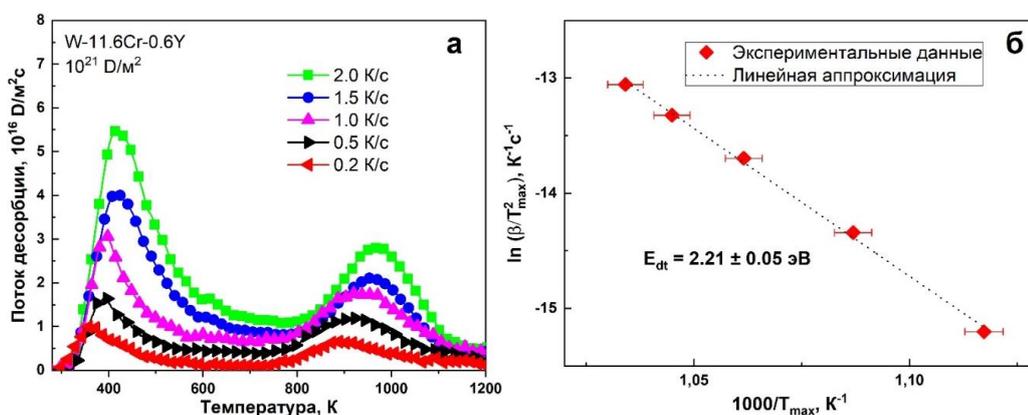


Рисунок 14 – Выход дейтерия из сплава W-11.6Cr-0.6Y, облученного при комнатной температуре дозой 10^{21} D/m² : а – ТДС спектры при различных скоростях нагрева (0,2 – 2,0 K/c) , б – оценка энергии выхода E_{dt}

В заключении сформулированы основные результаты диссертации:

1. Модернизирована установка МЕДИОН для реализации возможности облучения образцов двумя независимыми масс-сепарированными пучками ионов и *in-situ* термодесорбционной спектроскопии.

2. Выполнены эксперименты по термодесорбции дейтерия и гелия до 2500 К после ионного облучения вольфрама, что позволило повысить точность определения интегрального содержания гелия в этих экспериментах.
3. Проведено комплексное исследование процесса накопления гелия в вольфраме в зависимости от температуры, энергии, дозы облучения. Показано, что при дозах облучения порядка 5×10^{21} He/м² накопление гелия в вольфраме достигает предельных концентраций, что коррелирует с интенсивной модификацией поверхности и значительными изменениями в характере удержания гелия и дейтерия в поверхностном слое.
4. Продемонстрирован эффект замещения изотопов гелия в вольфраме при последовательном облучении ионами двух изотопов гелия. Измерения термодесорбции до 2500 К показали, что замещение происходит даже в наиболее высокоэнергетических ловушках. Представлено математическое описание полученных результатов.
5. Исследовано влияние модификации поверхности под действием ионов гелия с разной энергией на захват ионов дейтерия, и показано, что при повреждении поверхности ионами гелия эффективность захвата ионов дейтерия резко снижается с достижением предельных концентраций гелия в приповерхностной области, а в случае формирования наноструктурированной поверхности, эффективность захвата дейтерия определяется преимущественно концентрацией гелия и индуцированных гелием дефектов в поверхностном слое.
6. Исследован захват ионов дейтерия в сплаве W-Cr-Y. Показано повышенное накопление дейтерия в сплаве по сравнению с чистым вольфрамом во всех экспериментах без присутствия гелия. С помощью экспериментов с различной скоростью нагрева в ходе ТДС вычислены характеристики ловушек, определяющих повышенное накопление.
7. При насыщении поверхности сплава W-Cr-Y и чистого вольфрама гелием захват дейтерия не сильно отличался. Следовательно, захват дейтерия при насыщении поверхности гелием слабо зависит от свойств материала.

Список цитируемой литературы

1. Pitts R.A. et al. Physics basis for the first ITER tungsten divertor // Nuclear Materials and Energy. 2019. Vol. 20. P. 100696.
2. Bachmann C. et al. Issues and strategies for DEMO in-vessel component integration // Fusion Engineering and Design. 2016. Vol. 112. P. 527–534.
3. Baldwin M.J. et al. Effect of He on D retention in W exposed to low-energy, high-fluence (D, He, Ar) mixture plasmas // Nuclear Fusion. 2011. Vol. 51. P. 103021.
4. Ogorodnikova O.V. et al. Deuterium and helium retention in W with and without He-induced W ‘fuzz’ exposed to pulsed high-temperature deuterium plasma // Journal of Nuclear Materials. 2019. Vol. 515. P. 150–159.
5. Litnovsky A. et al. New oxidation-resistant tungsten alloys for use in the nuclear fusion reactors // Physica Scripta. 2017. T170. P. 014012.

Основные публикации по теме диссертации

- A1. **Harutyunyan Z.**, Ogorodnikova O., Gasparyan Y., Efimov V., Sorokin I., Sergeev N., et al. Tungsten fuzz annealing effect on deuterium retention in polycrystalline tungsten // Journal of Nuclear Materials. Vol. 567. 2022. P. 153811 (**Scopus, Web of Science**).
- A2. **Harutyunyan Z.**, Gasparyan Y., Efimov V., Litnovsky A., Klein F., Pisarev A., et al. Analysis of trapping sites for deuterium in W–Cr–Y SMART alloy // Vacuum. 2022. Vol. 199. P. 110956 (**Scopus, Web of Science**).
- A3. **Harutyunyan Z.**, Gasparyan Y., Ryabtsev S., Efimov V., Ogorodnikova O., Pisarev A., et al. Deuterium trapping in the subsurface layer of tungsten pre-irradiated with helium ions // Journal of Nuclear Materials. 2021. Vol. 548. P. 152848 (**Scopus, Web of Science**).
- A4. Ogorodnikova O., **Harutyunyan Z.**, Gasparyan Y., Efimov V., Kharkov M., Kaziev A., et al. Effect of the presence of helium in tungsten on deuterium retention // Journal of Nuclear Materials. 2021. Vol. 548. P. 152873 (**Scopus, Web of Science**).
- A5. **Арутюнян З.Р.**, Огородникова О.В., Аксенова А.С., Гаспарян Ю.М., Ефимов В.С., Харьков М.М. и др. Захват дейтерия в наноструктурированном

- поверхностном слое вольфрама, образованном при высокотемпературном облучении гелиевой плазмой // Поверхность. Рентгеновские, синхротронные и нейтронные исследования. 2020. № 12. С. 21–27 (**БАК**) ; **Harutyunyan Z.R.**, Ogorodnikova O.V., Aksenova A.S., Gasparyan Y.M., Efimov V.S., Kharkov M.M., et al. Deuterium Retention in a Nanostructured Tungsten Surface Layer Formed during High-Temperature Irradiation with Helium Plasma // Journal of Surface Investigation: X-ray, Synchrotron and Neutron Techniques.2020.Vol.14. P. 1248–1253(**Scopus**)
- A6.**Арутюнян З.Р.**, Гаспарян Ю.М., Ефимов В.С., Рябцев С.А., Писарев А.А. Удержание дейтерия в поверхностном слое вольфрама, предварительно облученном ионами гелия // Известия Российской академии наук. Серия физическая. 2020. том 84, № 6. С. 882–886 (**БАК**) ; **Harutyunyan Z.R.**, Gasparyan Y.M., Efimov V.S., Ryabtsev S.A., Pisarev A.A. Retention of Deuterium in the Surface Layers of Tungsten Preliminarily Irradiated with Helium Ions// Bulletin of the Russian Academy of Sciences: Physics.2020.Vol.84. P.727–731(**Scopus**).
- A7.Gasparyan Y., Ryabtsev S., Efimov V., **Harutyunyan Z.**, Aksenova A., Poskakalov A., et al. Helium retention in tungsten under plasma and ion beam irradiation and its impact on surface morphology // Physica Scripta. 2020. T171. P. 014017 (**Scopus, Web of Science**).
- A8.Ryabtsev S., Gasparyan Y., Efimov V., **Harutyunyan Z.**, Aksenova A., Poskakalov A., et al. Helium retention in tungsten irradiated with He⁺ ion beam at elevated temperatures // Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms. 2019. Vol. 460.P. 108–113 (**Scopus, Web of Science**).
- A9.Ryabtsev S., Gasparyan Y., Efimov V., **Harutyunyan Z.**, Poskakalov A., Pisarev A. Influence of the Initial Defect Structure on Helium Trapping in Tungsten under Ion Implantation // Physics of Atomic Nuclei. 2018. Vol. 81, № 11. P. 1541–1546(**Scopus, Web of Science**).

Научное издание

Арутюнян Зорий Робертович

АВТОРЕФЕРАТ

Диссертации на соискание ученой степени

кандидата физико-математических наук на тему:

Влияние гелия на захват ионов дейтерия в вольфраме
и вольфрамовых сплавах W-Cr-Y